Troisième Cycle
d'Enseignement supérieur

N° d'ordre : 284

THÈSE

PRÉSENTÉE A

L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX I

POUR L'OBTENTION DU DIPLOME DE

DOCTEUR-INGÉNIEUR EN CHIMIE-PHYSIQUE

(Option : Thermodynamique des états condensés)

PAR

Laure RICARD

Contribution à l'étude du comportement critique du second son près de la transition nématique - smectique A.

Soutenue le 8 février 1980, devant la Commission d'examen :

MM. A. PACAULT ..... *Président*

E. GUYON .....
M. HARENG ..... *Examinateurs*
H. GASPAROUX .....
J. PROST .....

— 1980 —

Troisième Cycle
d'Enseignement supérieur

N° d'ordre : 284

THÈSE

PRÉSENTÉE A

L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX I

POUR L'OBTENTION DU DIPLOME DE

DOCTEUR-INGÉNIEUR EN CHIMIE-PHYSIQUE

(Option : Thermodynamique des états condensés)

PAR

Laure RICARD

Contribution à l'étude du comportement critique du second son près de la transition nématique - smectique A.

Soutenue le 8 février 1980, devant la Commission d'examen :

MM. A. PACAULT ..... *Président*
E. GUYON .....
M. HARENG ..... *Examinateurs*
H. GASPAROUX .....
J. PROST .....

— 1980 —

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

Je tiens à remercier tout particulièrement :

- Monsieur le Professeur PACAULT, Membre correspondant de l'Institut, qui m'a accueilli au sein de son laboratoire.

- Monsieur le Professeur GASPAROUX, qui m'a permis de poursuivre mes travaux dans son groupe.

- Monsieur GUYON, Professeur à la Faculté d'Orsay et à l'Ecole de Physique-Chimie de Paris, qui m'a fait l'honneur de bien vouloir juger ce travail.

- Monsieur HARENG, Directeur du Laboratoire de visualisation de la Thomson CSF, qui a accepté de faire partie de mon jury de thèse.

- Monsieur PROST, Maître de Recherches au CNRS, dont l'aide constante et précieuse a permis l'aboutissement de ce travail.

Je ne voudrais pas oublier tous les membres du laboratoire qui m'ont fait profiter de leur compétence ou de leurs conseils dans la réalisation de cette thèse.

SOMMAIRE

INTRODUCTION GENERALE 5

CHAPITRE I : PRESENTATION THEORIQUE 7

I - PROPRIETES HYDRODYNAMIQUES ET ELASTIQUES DU SMECTIQUE A 9

II - FONCTION DE REPONSE DU SMECTIQUE A 26

Bibliographie 47

CHAPITRE II : MONTAGE EXPERIMENTAL 49

I - DESCRIPTION GENERALE DU MONTAGE EXPERIMENTAL 51

II - LA REGULATION THERMIQUE 54

III- DESCRIPTION DE L'ECHANTILLON 59

IV - DIFFUSION DE LA LUMIERE ET DETECTION 62

Bibliographie 69

CHAPITRE III : PRESENTATION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

I - DEPENDANCE DE LA FREQUENCE DE RESONANCE EN FONCTION DU VECTEUR D'ONDE DE DIFFUSION .. 74

II - COMPORTEMENT DE LA CONSTANTE DE COMPRESSION DES COUCHES A LA TRANSITION N-S_A 78

III- REPONSE BASSE FREQUENCE 96

Bibliographie 101

CONCLUSION GENERALE 103

Annexe I 105
Annexe II 111

Introduction Générale

Dans sa théorie hydrodynamique des smectiques A , DE GENNES a prédit l'existence d'une seconde branche acoustique liée à la symétrie de cette mésophase et qu'il a appelée "second son". Les techniques habituelles qui permettent de mettre en évidence les ondes sonores ne sont pas adaptées à l'étude de ce mode de cisaillement en régime hydrodynamique. C'est pourquoi nous avons dû utiliser une technique plus originale, la technique "des électrodes interdigitées" qui avait permis d'étudier la flexoélectricité dans les phases nématiques et isotropes.

Dans la première partie de cet ouvrage, après avoir exposé l'hydrodynamique du smectique A et défini le second son, nous développerons les calculs nécessaires à l'exploitation de cette technique.

La seconde partie sera plus spécialement consacrée à la description du montage expérimental et à l'analyse théorique du signal mesuré.

Dans la troisième, nous montrerons comment nos résultats expérimentaux éclairent sous un jour nouveau les études faites en smectique A d'une transition encore mal comprise, la transition N-S_A.

Chapitre I

PRESENTATION THEORIQUE

I - PROPRIETES HYDRODYNAMIQUES ET ELASTIQUES DU SMECTIQUE A

Utilisant une approche phénoménologique, DE GENNES {[1]} a, le premier, développé une théorie hydrodynamique du smectique A qui prévoit l'existence de deux branches acoustiques. L'une d'elles correspond aux fluctuations de densité et existe dans toutes les phases, alors que la seconde, appelée "second son" par analogie avec l'hélium superfluide, est directement liée à la symétrie des smectiques. Les relations existant entre la symétrie et les propriétés hydrodynamiques ont été particulièrement bien exposées par MARTIN, PARODI et PERSHAN {[2]} dans leur théorie hydrodynamique unifiée des cristaux, phases mésomorphes et liquides. C'est pourquoi nous allons la résumer dans ce paragraphe en l'appliquant directement au cas des smectiques A.

Dans tout système macroscopique, les grandeurs conservatives que l'on appelle "hydrodynamiques" retournent à l'équilibre après perturbation en un certain "temps caractéristique" d'autant plus lent que la longueur d'onde des fluctuations est grande. Les théories hydrodynamiques linéaires se placent ainsi dans un régime pour lequel cette longueur d'onde tend vers l'infini, ce qui permet de considérer que les phénomènes présentant des fluctuations beaucoup plus rapides sont localement à l'équilibre. La théorie de MPP commence par un décompte des symétries du système et des variables hydrodynamiques qui le décrivent.

1 - SYMETRIE DU SMECTIQUE A

Les smectiques A sont des matériaux stratifiés dont la structure au repos est formée de couches successives planes, perpendiculaires en moyenne à une direction commune Oz. Le groupe de symétrie ponctuel approprié est C_{∞} (phase uniaxe), ce qui implique que les molécules contenues dans les plans sont en moyenne parallèles à Oz. A l'intérieur d'une même couche, aucun ordre de position à longue distance n'est décelable :

l'ordre y est celui d'un liquide à deux dimensions.

Le smectique A possède donc un "ordre solide" dans la direction Oz (il y a brisure de symétrie de translation selon cet axe par rapport à un liquide isotrope). Il est alors naturel de choisir comme variable élastique la composante selon Oz du vecteur $\vec{u}$ déplacement, communément utilisé en élasticité du solide. u correspond tout simplement au déplacement de la couche par rapport à sa position au repos (figure 1).

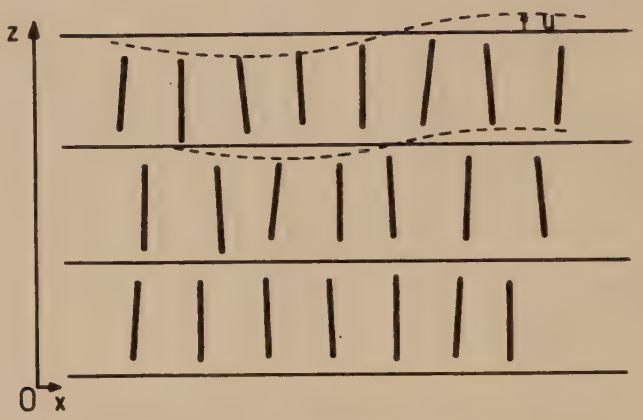


Figure I-1 : Représentation schématique de l'état smectique ; lignes pleines : aspect au repos ; lignes pointillées : déformation du plan des couches.

Le milieu étant uniaxe, il y a aussi brisure du groupe de symétrie des rotations. Comme dans les nématiques, elle peut se décrire par un vecteur directeur $\vec{n}$. Cependant l'inclinaison des molécules à l'intérieur même de la couche dont la position est maintenue constante, donne lieu à une force de rappel qui relaxe en un temps indépendant de la longueur d'onde de la perturbation. Ce phénomène n'est pas hydrodynamique et si les distorsions des couches se font sur des distances grandes par rapport aux longueurs microscopiques typiques, on peut considérer que les molécules restent toujours perpendiculaires aux couches. $\vec{n}$ et u ne sont alors pas deux variables indépendantes puisque les faibles variations de $\vec{n}$ selon Ox (δn_x) et selon Oy (δn_y) vérifient :

$$\delta n_x = - \frac{\partial u}{\partial x} \ll 1$$

$$\delta n_y = - \frac{\partial u}{\partial y} \ll 1$$

u est la seule variable hydrodynamique décrivant l'élasticité du smectique A .

2 - LES EQUATIONS DE CONSERVATION

D'après les considérations précédentes, un smectique se distingue d'un fluide isotrope par une brisure de symétrie translationnelle. Aux cinq grandeurs conservatrices ρ, la densité, ε la densité d'énergie, et $\vec{g}$ la densité d'impulsion, il convient donc d'ajouter la variable hydrodynamique u {[2]}. Elles vérifient les équations de conservation :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla_i g_i = 0$$

$$\frac{\partial \varepsilon}{\partial t} + \nabla_j J_j^{\varepsilon} = 0$$

$$\frac{\partial g_i}{\partial t} + \nabla_j \sigma_{ij} = 0$$

où $\vec{J}^{\varepsilon}$ est le flux de densité d'énergie et σ_{ij} le tenseur des contraintes.

u doit vérifier une équation du même type :

$$\frac{\partial u}{\partial t} = \dot{u} = J_z$$

J_z décrit l'amortissement du déplacement des couches.

Lorsque l'on cherche à résoudre ces six équations différentielles du premier ordre en $\partial/\partial t$ pour déterminer les modes propres de tels systèmes, c'est-à-dire lorsque l'on remplace $\partial/\partial t$ par $i\omega$, on obtient une équation séculaire du sixième degré en ω qui conduit à six modes :

- deux modes purement diffusifs (la relaxation thermique et un mode de cisaillement transverse);
- deux paires de modes propagatifs pour pratiquement toutes des directions du vecteur d'onde : le son normal et le second son.

C'est à la résolution de cette équation que conduit la théorie de MPP. Mais pour ce faire, il faut exprimer les différents flux en fonction des variables thermodynamiques du système.

3 - ECRITURE DE LA SOURCE D'ENTROPIE

Dans cette théorie seuls les modes hydrodynamiques sont pris en compte, et l'on peut toujours choisir leur longueur d'onde de façon à ce que l'équilibre local soit atteint. Le système vérifie donc l'identité thermodynamique :

$$Td(\rho s) = d\varepsilon - \mu d\rho - v_i\, dg_i - F_z\, du \qquad [1]$$

Les variables utilisées dans cette équation sont des quantités locales ($T(\vec{r},t)$ pour la température, $\mu(\vec{r},t)$ pour le potentiel chimique, etc...) qui fluctuent légèrement autour de leur valeur d'équilibre.

F_z est une force agissant sur le déplacement des couches ; elle doit tendre vers zéro en même temps que le vecteur d'onde $\vec{q}$ de la perturbation (puisque u est une variable hydrodynamique). Elle dérive donc d'un potentiel élastique :

$$F_z = -\nabla_i \phi_i^z$$

La source d'entropie au point $\vec{r}$ est la somme de deux termes :

$$\sigma = \frac{\partial(\rho s)}{\partial t} + \nabla_i J_i^s \qquad \text{où } J_i^s \text{ est le flux d'entropie.}$$

σ est une quantité locale dont l'intégration sur tout le volume de l'échantillon transforme le second terme de la somme en terme de surface. Il n'est donc pas utile de calculer le flux d'entropie qui, de toute façon, n'est pas défini d'une manière univoque. Ainsi σ se déduit directement de l'équation [1] par une dérivation par rapport au temps. MPP ont choisi de ne pas conserver le potentiel chimique comme variable du système et ils l'ont exprimé en fonction de la pression et des autres grandeurs thermodynamiques T, ρ, s et ε. Ils ont obtenu l'expression suivante de la source d'entropie :

$$T\frac{\partial(\rho s)}{\partial t} = -\frac{1}{T}\left[J_i^{\varepsilon} - (p+\varepsilon)v_i\right]\nabla_i T + (\delta_{ij}p - \sigma_{ij})\nabla_j v_i + J_z \nabla_j \phi_j \qquad [2]$$

Cette expression fait apparaître très clairement les trois forces généralisées du système qui correspondent respectivement aux flux d'énergie, de contrainte et au flux élastique.

4 - ECRITURE DES "FLUX GENERALISES"

Pour des processus réversibles et adiabatiques le flux élastique J_z est égal à sa partie réversible que l'on note J_z^R. Elle s'exprime en fonction des variables qui ont été choisies pour définir le smectique, soient p, T, ϕ

et $\vec{v}$. Sa forme peut être obtenue à l'aide d'un simple argument de symétrie. En effet u est invariable par renversement du temps. Puisque $\dot{u}^R = J^R$, le flux élastique est impair en fonction de t et ne peut s'exprimer qu'en fonction de v et de ses gradients. Les premiers termes de son développement sont :

$$J^R = A^z_i \, v_i + A^z_{ij} \, \nabla_i \, v_j$$

A^z_{ij} est nul comme tout tenseur de rang 3 dans un milieu qui possède un centre de symétrie (le smectique est optiquement uniaxe). Une rotation d'axe Oz et d'angle $\Pi/2$ transforme A^z_x en A^z_y et A^z_y en $- A^z_x$. Puisqu'elle laisse le milieu invariant :

$$A^z_x = A^z_y = - A^z_x = 0$$

Pour une simple translation selon Oz :

$$A^z_z = 1$$

Donc :

$$J^R_z = v_z \qquad [3]$$

Il est possible de déduire de [3] les parties réversibles des flux d'énergie et de contrainte. En effet, la quantité :

$$R = \int_v T \, \frac{\partial(\rho s)}{\partial t} \, d^3r$$

s'annule pour des processus réversibles et adiabatiques :

$$R\alpha \int_v d^3r \left[- \frac{1}{T} \left[J^{\varepsilon}_i - (p+\varepsilon^o) v_i \right] \nabla_i T - \left[\sigma_{ij} - \delta_{ij} p + \delta_{ij} \phi_j \right] \nabla_j v_i + \left[J_z - v_z \right] \nabla_i \phi_i \right]$$

Il s'ensuit immédiatement que :

$$\begin{cases} J^{\varepsilon R}_i = (p + \varepsilon^o) \, v_i \\ \sigma^R_{ij} = \delta_{ij} \, p - \delta_{iz} \, \phi_j \\ J^R_z = v_z \end{cases} \qquad [4]$$

Phénoménologiquement parlant, toutes les définitions des flux qui conduisent au même R sont équivalentes.

On peut donc écrire :

$$R = \int_V d^3r \left[- J_i^{\varepsilon D} \frac{\nabla_i T}{T} - \sigma_{ij}^D \nabla_j v_i + J_z^D \nabla_i \phi_i \right]$$

où la notation D indique que l'on prend les parties dissipatives. La correspondance flux-force suggère leur dépendance. Un des postulats fondamentaux de la thermodynamique linéaire est de supposer leur proportionnalité. Il conduit aux équations phénoménologiques suivantes :

$$\begin{cases} \sigma_{ij}^D = - \eta_{ijkl} \nabla_l v_k \\ J_i^{\varepsilon D} = - \kappa_{ij} \nabla_j T + \xi_i^z \nabla_j \phi_j^z \\ J_z^D = \frac{1}{T} \xi_i^z \nabla_i T + \zeta^z \nabla_i \phi_i^z \end{cases}$$

(Les tenseurs de rang impair sont nuls dans un milieu possédant un centre de symétrie). Puisque le smectique est uniaxe d'axe optique Oz, le tenseur κ_{ij} se réduit à trois composantes non nulles : $\kappa_{xx} = \kappa_{yy} = \kappa_\perp$; $\kappa_{zz} = \kappa_{/\!/}$

ξ_i^z se comporte comme A_i^z : seul $\xi_z^z = \xi$ est non nul.

On peut montrer que l'on peut toujours choisir un tenseur des contraintes symétrique sans nuire à la généralité des équations {[2]}. Soit alors :

$$v_{ij} = \frac{1}{2} (\nabla_i v_j + \nabla_j v_i)$$

Le tenseur des contraintes peut s'exprimer sous la forme suivante {[3]} :

$$\sigma_{ij}^D = \alpha_o \delta_{ij} v_{kk} + \alpha_1 \delta_{jz} \delta_{iz} v_{zz} + \alpha_4 v_{ij} + \bar{\alpha}_{56} (\delta_{iz} v_{zj} + \delta_{jz} v_{zi}) + \alpha_7 \delta_{iz} \delta_{jz} v_{kk}$$

5 - DESCRIPTION DES CONSTANTES ELASTIQUES

Jusqu'à présent on a noté de manière un peu vague les potentiels élastiques ϕ_i^z sans étudier l'influence de la symétrie du smectique sur leurs expressions.

Or, si l'on reécrit l'équation [1] :

$$d\varepsilon = Td(\rho s) + \mu d\rho + v_i dg_i - \nabla_i \phi_{iz} du$$

que l'on peut aussi exprimer après intégration par partie :

$$d\varepsilon = Td(\rho s) + \mu d\rho + v_i dg_i + \phi_i^z d\nabla_i u$$

on s'aperçoit que le potentiel élastique dépend de manière très simple de l'énergie du smectique

$$\phi_i^z = \frac{\partial \varepsilon}{\partial \nabla_i u}\Big|_{\rho,s,g_i}$$

Les déformations étant petites, on peut développer l'énergie en fonction de u et de ses gradients. Il est clair que si le déplacement des couches est constant, le smectique est simplement translaté selon Oz et son énergie libre reste la même (figure I2a).

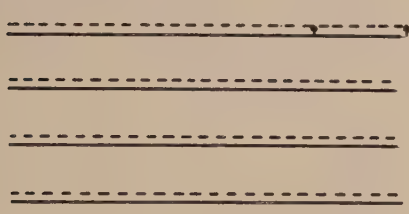


Figure I-2a : Lorsque le déplacement des couches smectiques est constant, il y a simple translation du système.

ε est donc une fonction quadratique (pour des raisons de stabilité) des gradients de u.

$\frac{\partial u}{\partial x}$ constant, correspond à une rotation de tout le système par rapport à Oz (figure I2b). Localement cela ne change pas l'énergie qui ne contient donc pas de termes de la forme $(\partial u/\partial x)^2$ ou $(\partial u/\partial y)^2$.

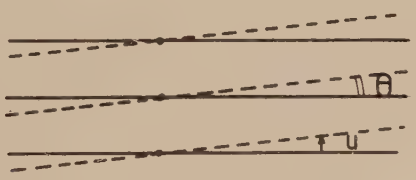


Figure I-2b : $\partial u/\partial x$ constant = rotation de tout le système.

Il faut pousser le développement de ε à l'ordre deux en gradients de x ou y. DE GENNES {[3]} l'écrit sous la forme :

$$\frac{1}{2} K \left(\frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} \right)$$

On reconnaît là, la contribution à l'énergie d'une déformation en gerbe de l'axe optique (flexion des couches) qui existe aussi dans un nématique.

La compression des couches (figure I2c) est décrite par le premier terme du développement en gradient z :

$$\frac{1}{2} B \left(\frac{\partial u}{\partial z} \right)^2$$

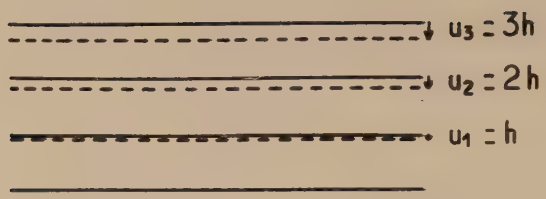


Figure I-2c : ∂u/∂z constant traduit une compression uniforme des couches.

Pour être tout à fait complet dans ce développement de l'énergie, il faut rajouter le terme de HOOKE $1/2\, A\,(\delta\rho/\rho)^2$ qui décrit la variation de la densité du milieu à épaisseur des couches constante et un terme de couplage entre la compression des couches et celle du smectique :

$$-C\left(\frac{\partial\rho}{\rho}\right)\left(\frac{\partial u}{\partial z}\right)$$

L'énergie "élastique" du smectique est la somme de toutes ces contributions :

$$\varepsilon - \bar{\varepsilon}_o = \frac{1}{2} B \left(\frac{\partial u}{\partial z}\right)^2 + \frac{1}{2} A \left(\frac{\delta\rho}{\rho}\right)^2 - C \left(\frac{\partial u}{\partial z}\right)\left(\frac{\delta\rho}{\rho}\right) + \frac{1}{2} K \left(\frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2}\right)^2$$

Les expressions des potentiels élastiques s'en déduisent immédiatement :

$$\begin{cases} \phi_z^z = \left(\dfrac{\partial\varepsilon}{\partial\nabla_z u}\right)_{\rho,s,g_i} = B\,\dfrac{\partial u}{\partial z} - C\left(\dfrac{\delta\rho}{\rho}\right) \\ \phi_\perp^z = \left(\dfrac{\partial\varepsilon}{\partial\nabla_\perp u}\right)_{\rho,s,g_i} = K\,\nabla_\perp\,(\nabla_\perp^2 u) \end{cases}$$

Nous pouvons remarquer que $\partial\phi_\perp/\partial\rho = 0$ et que $\partial\phi_\perp/\partial\nabla_z u$ est d'ordre 4 en gradients : il est très faible devant $\partial\phi_\perp/\partial\nabla_\perp u$ par exemple.

6 - LES EQUATIONS D'EVOLUTION

L'écriture de la source d'entropie a permis d'exprimer les différents flux (de densité d'énergie, de contrainte ou du paramètre d'ordre) en fonction des variables hydrodynamiques T, p, $\vec{v}$ et $\vec{\phi}^z$. D'où :

$$\frac{\partial\rho}{\partial t} + \nabla_i \rho v_i = 0$$

$$\dot{u} - v_z = \frac{1}{T}\,\xi\,\nabla_i T + \zeta^z\,\nabla_i\,\phi_i^z$$

$$\rho\dot{v}_i = \eta_{ijkl}\,\nabla_j\,\nabla_K\,v_l - \nabla_i p + \delta_{iz}\,\nabla_j\,\phi_j^z$$

$$\frac{\partial \varepsilon}{\partial t} = \kappa_{/\!/}\nabla_z^2 T + \kappa_\perp \nabla_\perp^2 T + \xi\,\nabla_z\,\nabla_j\,\phi_j^z - \nabla_i\left[(p+\varepsilon^o)v_i\right]$$

Soit encore en introduisant la variable :

$$q = \varepsilon^o - \frac{\bar{\varepsilon}^o + \bar{p}}{\bar{\rho}}\,\rho$$

liée aux variations d'entropie locale (on montre facilement que $dq = T\rho ds$) :

$$\left\{\begin{array}{l} \dfrac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla_i \rho v_i = 0 \\ \dot{u} - v_z = \dfrac{1}{T}\,\xi\,\nabla_i T + \zeta^z\,\nabla_i\,\phi_i^z \\ \rho\dot{v}_i = \eta_{ijkl}\,\nabla_j\,\nabla_k\,v_l - \nabla_i p + \delta_{iz}\,\nabla_j\,\phi_j^z \\ \dot{q} = \kappa_{/\!/}\nabla_z^2 T + \kappa_\perp \nabla_\perp^2 T + \xi\,\nabla_z\,\nabla_j\,\phi_j^z \end{array}\right. \qquad [5]$$

Dans ce système, les variations temporelles de ρ, q(ou s), v_i et u s'expriment en fonction de T, v_i, ϕ_i^z et p.

La symétrie du smectique nous a donné la dépendance de ϕ_i^z en fonction de u et de ρ. Pour que le système d'équations soit complet, il faut aussi connaître celle de p et T en fonction de ρ, s et $\nabla_j u$:

$$\nabla_i p = \left(\frac{\partial p}{\partial \rho}\right)_{s,u}\nabla_i\rho + \frac{1}{\rho T}\left(\frac{\partial p}{\partial s}\right)_{\rho,u}\nabla_i q + \left(\frac{\partial p}{\partial \nabla_j u}\right)_{\rho,s}\nabla_i\,\nabla_j\,u$$

$$\nabla_i T = \left(\frac{\partial T}{\partial \rho}\right)_{s,u}\nabla_i\rho + \frac{1}{\rho T}\left(\frac{\partial T}{\partial s}\right)_{\rho,u}\nabla_i q + \left(\frac{\partial T}{\partial \nabla_j u}\right)_{\rho,s}\nabla_i\,\nabla_j\,u$$

$$\nabla_i \phi_i^z = \left(\frac{\partial \phi_i^z}{\partial \rho}\right)_{s,u}\nabla_i\rho + \frac{1}{\rho T}\left(\frac{\partial \phi_i^z}{\partial s}\right)_{\rho,u}\nabla_i q + \left(\frac{\partial \phi_i^z}{\partial \nabla_j u}\right)_{\rho,s}\nabla_i\,\nabla_j\,u$$

La donnée de la matrice permet de rendre complet le système d'équation |5|:

$$\begin{pmatrix} \rho^2 \left(\frac{\partial p}{\partial \rho}\right)_{s,u} & \rho^2 \left(\frac{\partial T}{\partial \rho}\right)_{s,u} & \rho \left(\frac{\partial \phi_z}{\partial \rho}\right)_{s,u} & 0 \\ \left(\frac{\partial p}{\partial s}\right)_{u,\rho} & \left(\frac{\partial T}{\partial s}\right)_{u,\rho} & \frac{1}{\rho}\left(\frac{\partial \phi_z}{\partial s}\right)_{u,\rho} & 0 \\ \left(\frac{\partial p}{\partial \nabla_z u}\right)_{s,\rho} & \left(\frac{\partial T}{\partial \nabla_z u}\right)_{s,\rho} & \frac{1}{\rho}\left(\frac{\partial \phi_z}{\partial \nabla_z u}\right)_{s,\rho} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{1}{\rho}\left(\frac{\partial \phi_\perp}{\partial \nabla_\perp u}\right)_{s,\rho} \end{pmatrix} \quad [5bis]$$

Elle est symétrique. Pour s'en apercevoir il suffit d'écrire que $d(\varepsilon/\rho)$ est une différentielle totale :

$$d\left(\frac{\varepsilon}{\rho}\right) = \frac{1}{\rho^2} P \, d\rho + \frac{1}{\rho} g_i \, dv_i + \frac{1}{\rho} \phi_i^z \nabla_i \, du + T \, ds$$

On remarque, par exemple, que :

$$\rho^2 \left(\frac{\partial T}{\partial \rho}\right)_{s,u} = \rho^2 \frac{\partial^2 (\varepsilon/\rho)}{\partial s \, \partial \rho} = \left(\frac{\partial p}{\partial s}\right)_{u,\rho}$$

La démonstration des autres égalités se fait de la même façon. $\partial\phi_\perp/\partial s$ et $\partial\phi_\perp/\partial\nabla_z u$ ont été remplacés par des 0 car ils sont négligeables par rapport aux autres termes (ils sont d'ordre supérieur en gradients).

7 - SPECTRE DES FLUCTUATIONS DANS LE CAS OU LE SYSTEME EVOLUE DE MANIERE NON DISSIPATIVE. EXISTENCE DU SECOND SON

La résolution générale du système [5] qui conduit aux différents modes est assez compliquée et fastidieuse. Puisque le second son, que l'on cherche, est un mode propagatif, on va se placer dans le cas où le système évolue de manière adiabatique non dissipative, ce qui simplifiera les équations. Dans ce cas, les "flux" généralisés sont égaux à leur partie réversible.

Ainsi :

$$\sigma_{ij} = \sigma_{ij}^R = \delta_{ij} \, p - \delta_{iz} \, \phi_j^z$$

Cette approximation revient à négliger la viscosité.

$$\rho \dot{v}_i = - \nabla_j \sigma_{ij} = - \nabla_i p + \delta_{iz} \nabla_j \phi_j^z$$

Dérivons encore une fois par rapport au temps :

$$\rho \ddot{v}_i = \frac{\partial}{\partial t} \left[- \nabla_i p + \delta_{iz} \nabla_j \phi_j^z \right]$$

$$= - \nabla_i \left[\frac{\partial p}{\partial \rho} \frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial P}{\partial \nabla_j u} \frac{\partial \nabla_j u}{\partial t} \right] + \delta_{iz} \nabla_j \left[\frac{\partial \phi_j^z}{\partial \rho} \frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial \phi_j^z}{\partial \nabla_k u} \frac{\partial \nabla_k u}{\partial t} \right]$$

Si l'on tient compte de la symétrie de la matrice et si l'on remplace les variations temporelles de ρ et de u par leurs expressions données par les deux autres équations d'évolution, on obtient :

$$\rho \ddot{v}_i = - \nabla_i \left[- \rho \left(\frac{\partial p}{\partial \rho} \right) \nabla_k v_k + \rho \left(\frac{\partial \phi_j^z}{\partial \rho} \right) \nabla_j v_z \right]$$

$$+ \delta_{iz} \nabla_j \left[- \rho \left(\frac{\partial \phi_j^z}{\partial \rho} \right) \nabla_k v_k + \left(\frac{\partial \phi_j^z}{\partial \nabla_k u} \right) \nabla_k v_z \right]$$

On recherche des solutions ayant la forme d'ondes planes :

$$v_i \sim e^{i \vec{q} . \vec{r}} \, e^{i \omega t}$$

Elles vérifient le système de deux équations à deux inconnues :

$$\begin{cases} - \omega^2 v_\perp = A \, v_\perp + B \, v_z \\ - \omega^2 v_z = B \, v_\perp + C \, v_z \end{cases}$$

avec :

$$A = - \left(\frac{\partial p}{\partial \rho} \right) q_\perp^2 \qquad B = q_z q_\perp \left[- \frac{\partial p}{\partial \rho} + \frac{\partial \phi_z^z}{\partial \rho} \right]$$

$$C = \left[- \left(\frac{\partial p}{\partial \rho} \right) q_z^2 + 2 \frac{\partial \phi_z^z}{\partial \rho} q_z^2 - \frac{1}{\rho} \frac{\partial \phi_z^z}{\partial \nabla_z u} q_z^2 - \frac{1}{\rho} \frac{\partial \phi_\perp^z}{\partial \nabla_\perp u} q_\perp^2 \right]$$

Ce système est non trivial si et seulement si son déterminant est nul. Ainsi dans l'approximation où on né-

glige les effets dissipatifs, le couplage entre les deux vitesses $v_\perp$ et v_z conduit à une équation quadratique en ω^2:

$$\omega^4 + \omega^2 \left[-\frac{\partial p}{\partial \rho}\left(q_\perp^2 + q_z^2\right) + q_z^2 \left[2\,\frac{\partial \phi_z^z}{\partial \rho} - \frac{1}{\rho}\,\frac{\partial \phi_z^z}{\partial \nabla_z u} \right] - q_\perp^2\,\frac{1}{\rho}\,\frac{\partial \phi_\perp^z}{\partial \nabla_\perp u} \right]$$

$$+ \left[\frac{1}{\rho}\left(\frac{\partial p}{\partial \rho}\right)\left(\frac{\partial \phi_z^z}{\partial \nabla_z u}\right) - \left(\frac{\partial \phi_z^z}{\partial \rho}\right)^2 \right] q_\perp^2\, q_z^2 = 0$$

La solution de cette équation donne deux paires de modes ayant respectivement pour vitesses $\pm c_1$ et $\pm c_2$, qui vérifient (à l'ordre le plus bas en q) :

$$\begin{cases} c_1^2 + c_2^2 = \left(\dfrac{\partial P}{\partial \rho}\right)_{s,u} + \cos^2\Psi \left[\dfrac{1}{\rho}\left(\dfrac{\partial \phi_z^z}{\partial \nabla_z u}\right)_{\rho,s} - 2\left(\dfrac{\partial \phi_z^z}{\partial \rho}\right)_{s,u} \right] \\ c_1^2\, c_2^2 = \cos^2\Psi \sin^2\Psi \left[\dfrac{1}{\rho}\left(\dfrac{\partial p}{\partial \rho}\right)_{s,u} \left(\dfrac{\partial \phi_z^z}{\partial \nabla_z u}\right)_{s,\rho} - \left(\dfrac{\partial \phi_z^z}{\partial \rho}\right)^2_{s,u} \right] \end{cases}$$

[6]

Ψ est l'angle que fait le vecteur d'onde $\vec{q}$ avec l'axe Oz.

On reconnaît dans $(\partial p/\partial \rho)_{s,u}$ le carré de la vitesse du son dans un fluide isotrope. Il est égal à l'inverse du coefficient de compressibilité adiabatique A divisé par la valeur moyenne d'équilibre de la densité.

$$\left(\frac{\partial p}{\partial \rho}\right)_{s,u} = \bar{\rho}^2\,\frac{\partial^2(\varepsilon/\rho)}{\partial \rho^2} = \frac{A}{\rho}$$

Lorsque l'on exprime la correspondance entre les constantes thermodynamiques et les constantes élastiques, le système décrivant les deux paires de mode devient :

$$\begin{cases} c_1^2 + c_2^2 = \dfrac{A}{\rho} + \dfrac{1}{\rho}\cos^2\Psi\,(B + 2\,C) \\ c_1^2\, c_2^2 = \dfrac{A}{\rho}\cos^2\Psi \sin^2\Psi \left(B - \dfrac{c^2}{A}\right) \end{cases}$$

La figure I3 montre l'allure de ces vitesses en fonction de la direction de propagation. La branche la plus éloignée de l'origine correspond, pour l'essentiel à une modulation de la densité, et est en cela fort semblable à

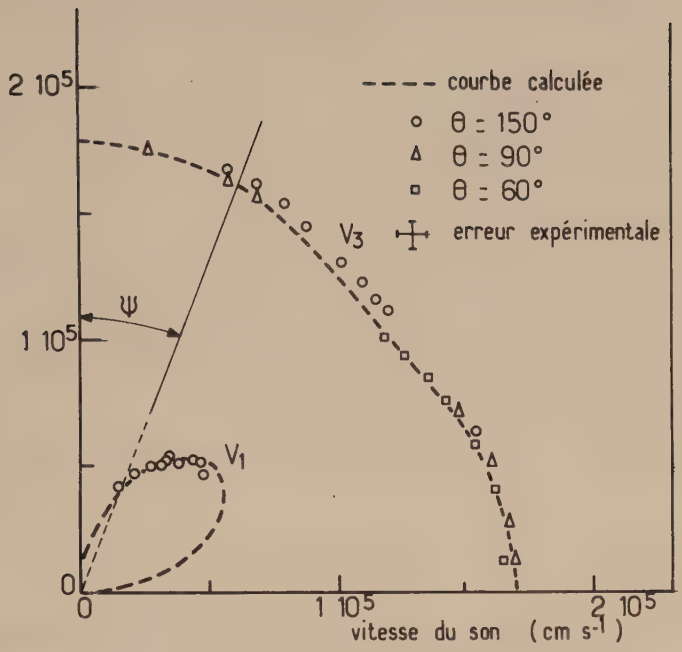


Figure I-3 : MBMBAC T = 60,7°C (Smectique A) (d'après la référence {7}).

la branche acoustique des fluides isotropes (premier son). Par contre la seconde résulte de l'existence de la structuration en couches du système et le phénomène qu'elle décrit est appelé second son. L'anisotropie des propriétés de cette onde est extrême puisque, pour les directions parallèle et perpendiculaire à l'axe optique, sa vitesse de propagation est nulle (mode purement diffusif). Lorsque ce mode est propagatif, il correspond à une oscillation de l'épaisseur des couches smectiques (vibration de u).

Une résolution complète des équations d'évolution conduirait à montrer l'existence supplémentaire :

- *d'un mode de diffusion thermique,*
- *d'un mode de cisaillement hydrodynamique du type de ceux existant dans les fluides isotropes.*

On remarquera que le nombre de modes est égal au nombre de variables hydrodynamiques du système.

Lorsque $\vec{q}$ est parallèle à Oz, une résolution simple du système [5] permet de prévoir les six modes suivants {2,4} :

- *deux modes propagatifs longitudinaux de compression, de vitesses respectives* $\pm((A+B+2C)/\rho)^{1/2}$;
- *un mode de diffusion thermique ;*

- *deux modes non propagatifs de cisaillement dans deux directions perpendiculaires entre elles et orthogonales à l'axe optique ;*
- *un mode de "perméation" dans lequel les molécules diffusent d'une couche smectique à une autre* {5,6}.

Lorsque le vecteur d'onde $\vec{q}$ est perpendiculaire à l'axe optique, les deux modes du second son se dédoublent. L'un se transforme en un mode de cisaillement purement diffusif. L'autre est remplacé par un mode non propagatif d'ondulation des couches correspondant à une déformation en gerbe du vecteur directeur $\vec{n}$ {3}.

Les deux modes propagatifs ont des vitesses $\pm c$ telles que :

$$c = \left(\frac{A}{\rho}\right)^{1/2}$$

8 - PREMIERES MISES EN EVIDENCE EXPERIMENTALES DU SECOND SON

A - DIFFUSION BRILLOUIN

La première mise en évidence expérimentale du second son fut faite par LIAO, CLARK et PERSHAN {7}. Ils ont utilisé les techniques de diffusion Brillouin dans un composé smectogène : le β-methyl butyl [p(p methoxy benzylidene) amino] cinnamate (MBMBAC) qui possède une phase smectique A entre 60°C et 81°C.

Leur technique consiste à analyser la fréquence de la lumière diffusée par les ondes acoustiques (excitées thermiquement) avec un interféromètre de Fabry Perot à deux passages.

La figure I3 donne une représentation polaire des vitesses $c_1(\Psi)$ et $c_2(\Psi)$ des deux modes acoustiques qu'ils ont observés dans la phase smectique A du composé étudié. Le tracé en pointillé donne l'allure de la dépendance théorique des vitesses en fonction de l'angle Ψ (équation [6]) après un ajustage des constantes élastiques de façon à obtenir le meilleur paramétrage des points expérimentaux.

L'observation de cette figure montre que la vitesse du son normal c_1 est pratiquement isotrope : le couplage entre les deux modes acoustiques est faible.

LIAO et coll. ont retrouvé la forte anisotropie de la vitesse du second son pour des angles inférieurs à 45°C. Mais, lorsqu'ils s'approchent de cet angle, le mode transversal devient de plus en plus large et ils n'ont pas

été en mesure de prouver l'existence du second son pour des angles supérieurs à 45°.

Ce fait n'est pas expliqué dans la théorie hydrodynamique linéaire des smectiques. En faisant intervenir un processus de relaxation non hydrodynamique comme l'inclinaison des molécules à l'intérieur des couches, F. BROCHARD {[8]} a montré que le second son pouvait être amorti pour des angles supérieurs à 45°. LIAO, CLARK et PERSHAN ont aussi avancé l'hypothèse d'un couplage non linéaire des variables hydrodynamiques avec les défauts {[7]}. A notre connaissance, il n'existe pas d'expérience permettant de trancher entre les explications avancées.

J.P. Le PESANT {[4]} a affiné les mesures en utilisant un interféromètre de Fabry Perot à quatre passages, et il a confirmé tous les résultats obtenus par LIAO, CLARK et PERSHAN.

Les expériences de diffusion Brillouin comportent deux limitations :

- tout d'abord, elles demandent beaucoup de puissance lumineuse et l'échantillon doit subir un fort échauffement ;

- ensuite, elles ne peuvent pas mesurer des vitesses trop faibles. Le pic central étant de l'ordre du GHz, une fréquence de résonance du second son de 100 kHz ne peut pas se voir.

Ces deux limitations font que la diffusion Brillouin n'est pas adaptée à une étude fine en température de l'annulation de la vitesse du second son (et des constantes élastiques B et C) à l'approche de la transition N S_A.

B - METHODE ACOUSTIQUE

Pour prouver l'existence du second son, BACRI {[9]} a mis en oeuvre un second type d'expérience qui utilise un couplage avec un mode transversal se propageant dans un solide. Le cristal liquide qu'il a étudié est le cyano benzilidène octyl oxyaniline (CBOOA). Il place une lame mince de smectique entre une plaque de silice et un prisme de paratellurite dans lequel il envoie une onde ultrasonore transversale (figure I4a). Il mesure la différence entre l'intensité de l'impulsion réfléchie sur la première face du prisme et l'intensité de l'onde réfléchie ayant traversé le prisme de paratellurite. Le montage expérimental impose une valeur de $\Pi/4$ à l'angle d'incidence θ_1 de l'onde transversale à l'interface solide-cristal liquide. Soit s_1 sa vitesse dans le solide. Elle se propage dans le cristal liquide avec une célérité :

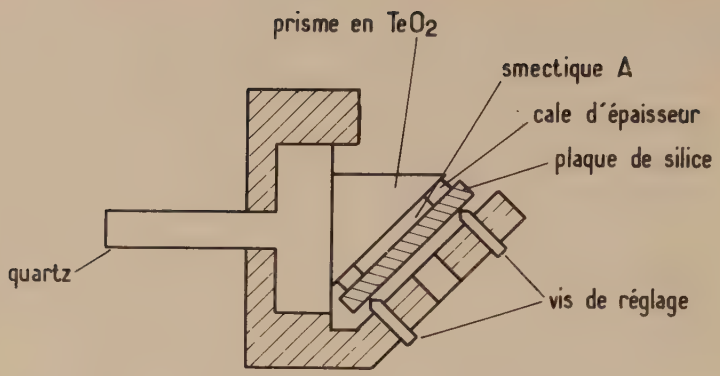


Figure I-4a : Montage expérimental.

$$s_2 = s_2^\circ \cos\theta_2 \sin\theta_2$$

L'angle de réfraction θ_2 est imposé par les valeurs de θ_1, s_1 et s_2°. Pour le calculer, BACRI fait une construction analogue à celle d'HUYGUENS (figure I4b). Elle exprime directement la conservation de la composante tangentielle du vecteur d'onde :

$$\sin\theta_1 / s_1 = \cos\theta_2 / s_2^\circ \qquad [7]$$

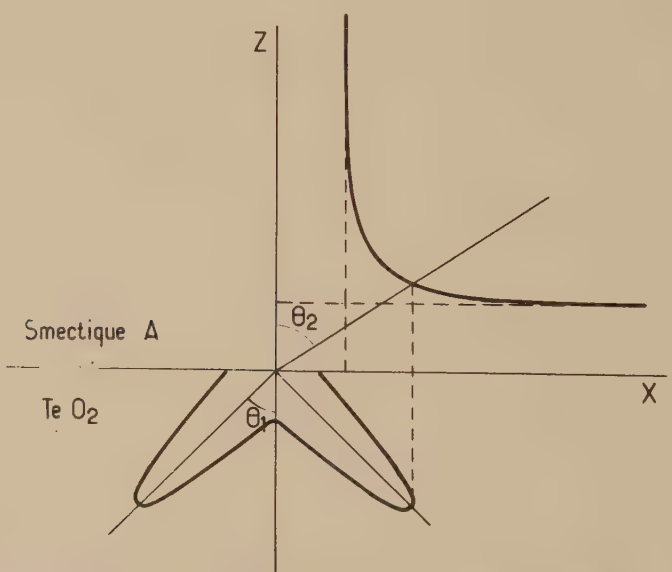


Figure I-4b : Surface des indices acoustiques à l'interface TeO_2-S_A (construction d'Huygens). θ_2 définit la direction de propagation de la vitesse de phase.

Les valeurs expérimentales des vitesses donnent :

$$s_1 = 620\text{m/s} \qquad s_2^o \sim 940\text{m/s}$$

On s'aperçoit alors que :

$$\cos\theta_2 > \sin\theta_1 = \frac{\sqrt{2}}{2}$$

Cette expérience n'est pas appropriée pour étudier le second son avec un angle Ψ supérieur à $\Pi/4$.

D'autre part, l'observation de la figure I4b ou de l'expression [7] montre que lorsque :

$$s_2^o < \frac{s_1}{\sin\theta_1} = \sqrt{2}\, s_1$$

il y a réflexion totale de l'onde transversale du solide.

Cette expérience de résonance acoustique donne une mesure directe de la célérité du second son et un ordre de grandeur de l'atténuation loin de la transition N S_A.

Mais, pas plus que la technique de diffusion Brillouin, elle n'est adaptée à une étude fine en température du mode transversal du smectique lorsque sa vitesse s'annule à la transition.

Enfin, il est important de remarquer que ces deux méthodes mesurent la célérité du second son à des fréquences nettement supérieures à 10 MHz pour lesquelles les équations hydrodynamiques ne sont plus valables {[16]}. Nous discuterons les conséquences de ce fait dans l'analyse de nos résultats expérimentaux.

II - FONCTION DE REPONSE DU SMECTIQUE A

A la fin du paragraphe précédent, nous avons vu que les techniques traditionnelles de diffusion Brillouin ou de résonance acoustique ne permettent pas de mettre en évidence le second son pour des angles Ψ supérieurs à $\Pi/4$. Si pour l'une de ces méthodes la difficulté réside dans un élargissement non expliqué de la raie Brillouin, pour l'autre elle vient de la faible valeur de la vitesse de ce mode de cisaillement. La technique de diffusion Brillouin, pour laquelle la raie centrale est de l'ordre du GHz, ne peut pas non plus déceler une propagation du second son trop "lente".

Ainsi, ces méthodes sont mal adaptées à l'étude de l'amortissement du mode de cisaillement du smectique A à l'approche de la transition $N S_A$.

Nous avons donc été amenés à utiliser une autre technique, dite "des électrodes interdigitées". Elle consiste à créer un champ électrique périodique qui, par l'intermédiaire du couplage flexoélectrique, excite le second son. Dans ce paragraphe, nous allons calculer la fonction de réponse du smectique soumis à cette force extérieure. Le montage expérimental et la "détection" de l'onde acoustique seront décrits dans la seconde partie de cette thèse.

1 - LA TECHNIQUE DES ELECTRODES INTERDIGITALES

En 1969 R.B. MEYER {[10]} a remarqué la possibilité d'existence de couplage linéaire entre les variables angulaires ($\delta\vec{n}$) et les champs électriques dans les cristaux liquides. Le nom de flexoélectricité fut donné à ce phénomène par DE GENNES, pour bien marquer la différence de cet effet avec la piézoélectricité (qui n'existe pas dans un milieu acceptant la symétrie d'inversion).

Pour montrer de manière non ambigüe l'existence de ce phénomène PROST et PERSHAN {[11]} furent amenés à développer une technique originale, "la technique des électrodes interdigitales". Elle permit de confirmer la théorie microscopique de la flexoélectricité que PROST et MARCEROU {[12,13]} élaborèrent.

Nous avons aussi utilisé cette méthode pour notre étude sur l'amortissement du second son. En effet, l'observation de la figure I-5 montre que la propagation d'une onde de cisaillement selon une direction oblique par rapport à l'axe Oz crée à la fois une compression des couches et une inclinaison des molécules. Il est clair, alors, que l'un des moyens d'exciter le second son est d'exercer un couple périodique sur les molécules du cristal liquide ; c'est ce que réalise cette technique.

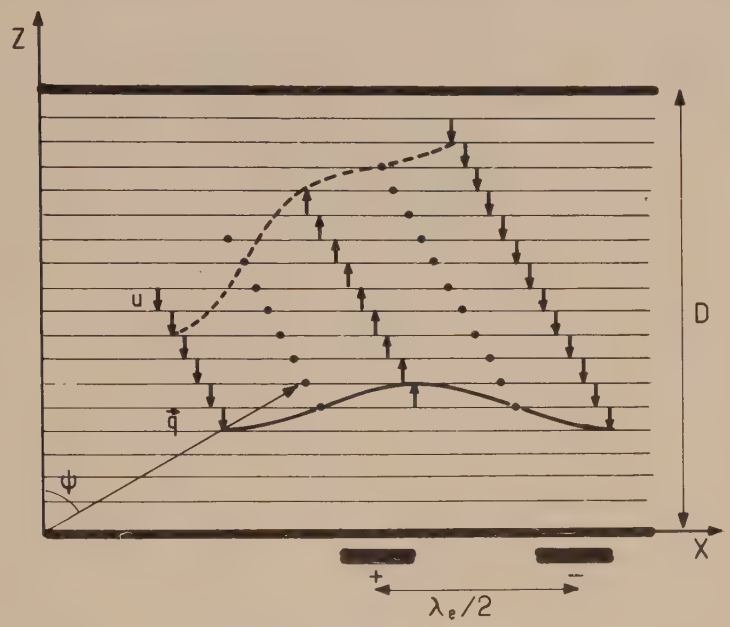


Figure I-5 : Visualisation d'une onde de cisaillement dans un smectique : les flèches représentent le vecteur déplacement u. Les plans équiphases perpendiculaires au vecteur d'onde $\vec{q}$ sont indiqués par les points. L'observation du déplacement dans la direction Oz montre que l'onde de cisaillement provoque une compression des couches ; par contre, l'observation de u dans la direction Ox indique qu'il y a aussi une inclinaison des molécules.

On utilise pour cela un monocristal en géométrie "homéotrope" entre deux lames de verre. Les électrodes gravées sur l'une de ces faces ont la forme de deux réseaux interdigités (figure I-6). Ils sont constitués d'un dépôt métallique (en général de l'aluminium) recouvert d'une mince couche de silice (d'épaisseur 2 à 3 µm). Si l'on impose une différence de potentiel entre les deux réseaux, on crée un champ électrique (avec de forts gradients) dont la répartition a été calculée {[11]}. En première approximation, on

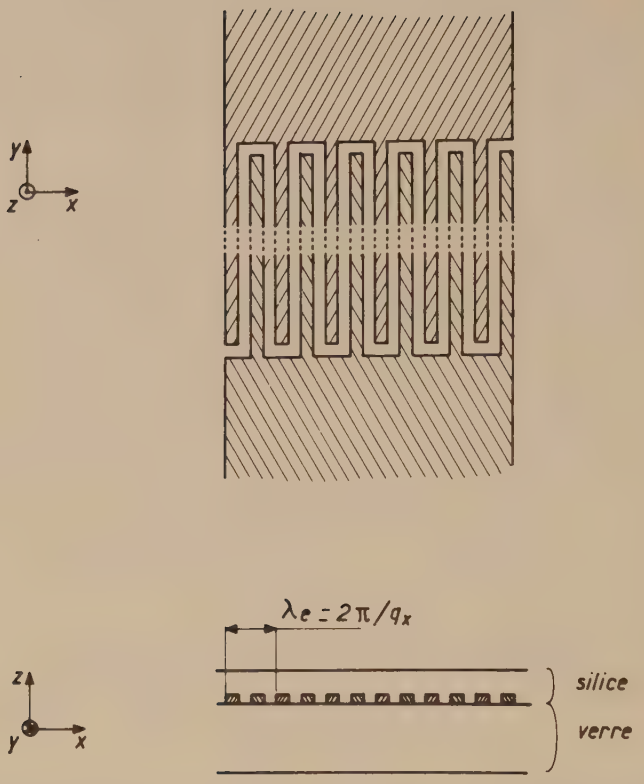


Figure I-6a : Electrodes interdigitales vues de dessus et en coupe. L'épaisseur au-dessus des électrodes symbolise une couche de silice (de 500 à 2000 Å).

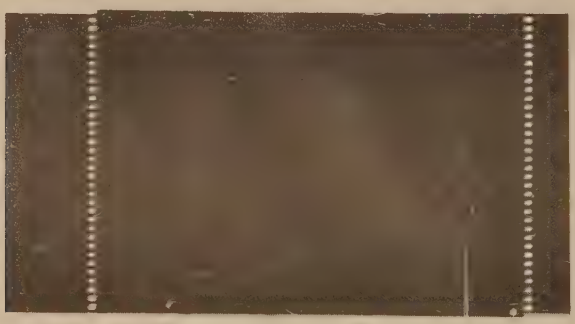


Figure I-6b : Photographie d'électrodes interdigitales vues au microscope. La surface utile a pour dimensions 100 µm x 150 µm. La région centrale forme un réseau de diffraction de période 2,5 µm. Les deux extrémités forment un réseau de période double qui est aussi la période du champ électrique au centre des électrodes.

peut considérer qu'il est périodique dans la direction Ox, et uniforme dans la direction Oy (figure I-6). L'utilisation de champs alternatifs permet de s'affranchir des charges d'espace.

La réponse du smectique à cette excitation électrique est la conséquence de deux phénomènes (figure I-7):

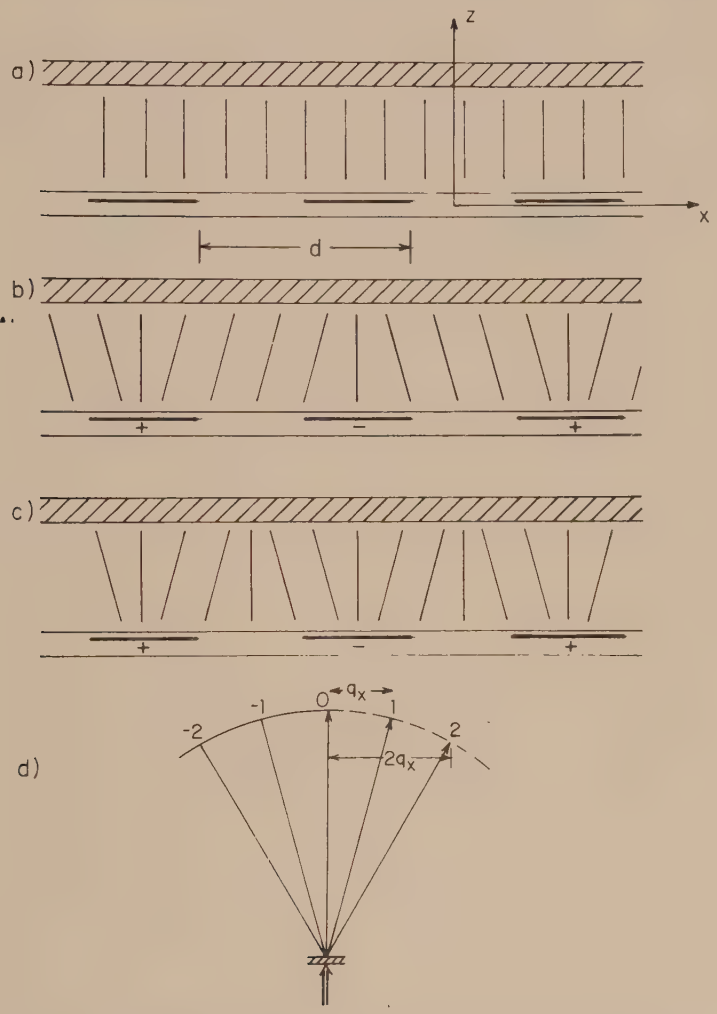


Figure I-7 : a) Echantillon homéotrope ($\vec{n}_o$ // Oz) placé entre les électrodes (recouvertes d'un dépôt de silice) et une lame de verre parallèle. Les traits verticaux représentent la direction de l'axe optique (vecteur directeur). Le voltage appliqué est nul.

b) Distorsion de l'axe optique résultant d'un couplage linéaire (elle a pour période $\lambda_e = 2d$).

c) Distorsion de l'axe optique résultant d'un couplage quadratique (elle a pour période d).

d) L'échantillon étant symbolisé par la surface hachurée : la direction "0" est celle du faisceau incident ; les directions "±1" sont celles des faisceaux diffusés par une distorsion du type b) ($q_x = 2\Pi/\lambda_e$) ; les directions "±2" sont celles des faisceaux diffusés par une distorsion du type c) ($2q_x = 2\Pi/d = \Pi/\lambda_e$).

- d'une part, le couplage flexoélectrique provoque une inclinaison du vecteur directeur dans la direction Ox. Puisqu'il est linéaire par rapport au champ, la distorsion de l'axe optique du milieu a nécessairement la période du champ électrique : λe. Soit $q_x = 2\Pi/\lambda e$. La distorsion s'écrit {11,12} :

$$\delta n_x^f(x,z) = \sum_{p=-\infty}^{+\infty} \delta n_p^f(z)\, e^{ipq_x x}$$

- d'autre part, le couplage diélectrique (quadratique par rapport au champ) crée lui aussi une déformation du smectique mais de période moitié ($\lambda e/2$).

$$\delta n_x^d(x,z) = \sum_{p-\infty}^{+\infty} \delta n_p^d(z)\, e^{2ipq_x x}$$

Lorsque le voltage appliqué aux électrodes est faible, les deux effets sont découplés {12} et ils forment, dans le cristal liquide uniaxe, un réseau de phase correspondant à la somme des deux distorsions flexoélectrique et diélectrique. Ainsi, si dans la détection, on sélectionne l'onde diffusée par la première composante de Fourier (elle fait avec le faisceau transmis un angle de $\theta \sim \sin^{-1}(\pm q_x \frac{\lambda}{\Pi})$ où λ est la longueur d'onde optique), on s'affranchit des effets de l'alignement diélectrique qui ne provoque pas de diffusion dans cette direction.

La composante q_x du vecteur d'onde de la distorsion est ainsi une donnée d'expérience. Soient $\vec{k}_i$ et $\vec{k}_d$ les vecteurs d'onde des faisceaux lumineux incident et diffusé. Lorsque la diffusion est polarisée, leurs extrémités appartiennent à la même surface des indices (figure I-8a). Le choix de $\vec{q}_x$ et de $\vec{k}_i$ détermine donc de manière unique la composante q_z du vecteur d'onde de la distorsion :

$$q_z = k_z^d - k_z^i$$

A une diffusion dépolarisée (figure I-8b) correspond une autre composante q_z.

L'amplitude de l'onde émise dans la direction d'observation est proportionnelle à la transformée de Fourier de la distorsion {11 12} :

$$A \sim \delta n(q_x,q_z) = \int_o^D \delta n(q_x,z)\, e^{-iq_z z}$$

(D est l'épaisseur de l'échantillon).

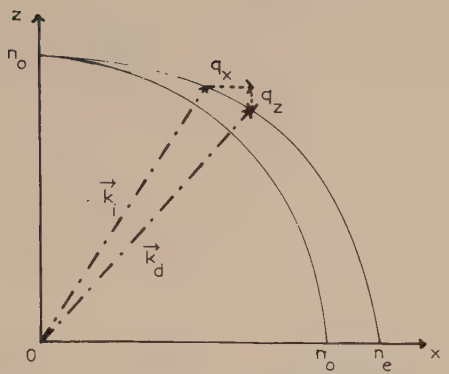


Figure I-8a : Diffusion polarisée : la donnée du vecteur d'onde lumineux incident $\vec{k}_i$ et de la composante selon Ox du vecteur d'onde de la déformation q_x détermine de manière unique sa composante selon Oz q_z.

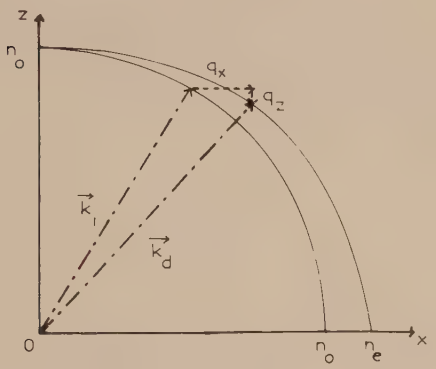


Figure I-8b : Diffusion dépolarisée : les extrémités des vecteurs d'ondes incidents et diffusés $\vec{k}_i$ et $\vec{k}_d$ n'appartiennent pas à la même surface des indices.

Dans un smectique, dans la limite hydrodynamique, l'axe des molécules reste en moyenne perpendiculaire à la couche, et l'inclinaison du vecteur directeur est liée au déplacement :

$$\delta n_x = - \nabla_x u << 1$$

Cette limite est définie par :

$$\nu << \frac{B_\perp}{2\Pi\gamma} = \nu_e$$

où $B_\perp$ est une constante élastique qui décrit la difficulté qu'ont les molécules de s'incliner dans la couche, et où γ est le coefficient de friction correspondant. Diverses expériences {[12,13]} ont montré que $\nu_e \sim 10^6, 10^7$Hz.

L'amplitude de l'onde diffusée sera ainsi proportionnelle à u (q_x, q_z) pour des fréquences d'étude telles que $\nu \ll \nu_e$.

Dans la suite, nous allons calculer cette fonction de réponse du smectique A lorsqu'il est soumis à une excitation électrique périodique. C'est la solution des équations du mouvement que nous avons rappelées dans le premier chapitre mais dans lesquelles il faut rajouter les termes dus à la force extérieure.

2 - CONTRIBUTION DE LA FLEXOELECTRICITE A L'ENERGIE DU SMECTIQUE A

Dans les cristaux ne possédant pas la symétrie d'inversion, le couplage à l'ordre le plus bas entre la déformation et le champ $\vec{E}$ donne, au développement de l'énergie, les termes piézoélectriques proportionnels à $\vec{E}\,\vec{\nabla}u$. Le smectique A possède un centre de symétrie et les premiers termes non nuls ont la forme $\vec{\nabla}\vec{E}\,\vec{\nabla}u$ ou $\vec{E}\,\vec{\nabla}\vec{\nabla}u$. Ce couplage entre les gradients de champ électrique et la déformation est le couplage flexoélectrique. PROST et PERSHAN {[11]} ont montré qu'il suffisait d'un seul coefficient pour l'exprimer :

$$\Delta\varepsilon = - f \left(\frac{\partial u}{\partial x}\right) \frac{\partial E_x}{\partial z}$$

Le couplage entre la déformation et la dilatation du smectique ($\theta = -\delta\rho/\rho$) induit {[13]} un second terme décrivant les effets du champ électrique sur θ :

$$\Delta\varepsilon = - f \left(\frac{\partial u}{\partial x}\right) \frac{\partial E_x}{\partial z} - f'\theta \frac{\partial E_x}{\partial x}$$

(Son expression donnée ici tient compte de ce que la contribution flexoélectrique au vecteur déplacement est négligeable {[11]}, c'est-à-dire que $\vec{\nabla}\,\varepsilon\,\vec{E} = 0$).

On peut s'attendre à ce que le premier terme soit bien plus important que le second, la principale action du champ électrique étant d'exercer un couple sur les molécules.

Soit donc l'expression totale de l'énergie élastique du smectique en présence du champ électrique créé par les électrodes :

$$\Delta\varepsilon = \frac{1}{2} A\theta^2 + C\theta \frac{\partial u}{\partial z} + \frac{1}{2} B \left(\frac{\partial u}{\partial z}\right)^2 - f \frac{\partial u}{\partial x} \frac{\partial E_x}{\partial z} - f'\theta \frac{\partial E_x}{\partial x}$$

Les nouveaux potentiels élastiques s'en déduisent immédiatement. Nous sommes maintenant en mesure de résoudre les équations du mouvement du smectique A lorsqu'il est soumis à un champ électrique périodique dans la direction Ox.

3 - LES EQUATIONS D'EVOLUTION

L'ordre de grandeur de la vitesse du second son trouvé par BACRI nous laisse prévoir une fréquence de résonance de ce mode acoustique de l'ordre de 100 kHz. Elle est bien supérieure à la fréquence de relaxation

$$\nu_T = \frac{1}{2\Pi} D_T q^2$$

($\sim$ 60 Hz dans nos expériences) des phénomènes thermiques, et ce sont donc les coefficients d'élasticité isentropiques qu'il faut prendre en compte.

En présence du champ électrique, l'expression des équations du mouvement devient :

$$\begin{cases} \dot{\rho} + \rho \nabla_i v_i = 0 \\ \dot{u} - v_z = \lambda_p (\nabla_x \phi_x + \nabla_z \phi_z) = \lambda_p \left(B \dfrac{\partial^2 u}{\partial z^2} + C \dfrac{\partial \theta}{\partial z} - f \dfrac{\partial^2 E_x}{\partial x \partial z} \right) \\ \rho \dot{v}_z = - \nabla_z p + \left[B \dfrac{\partial^2 u}{\partial z^2} + C \dfrac{\partial \theta}{\partial z} - f \dfrac{\partial^2 E_x}{\partial x \partial z} \right] + \sigma^D_{jz,j} \\ \rho \dot{v}_x = - \nabla_x p + \sigma^D_{jx,j} \end{cases}$$

où $\sigma^D_{ji,j}$ est la dérivée par rapport à x_j du tenseur des contraintes dissipatif.

La pression dépend de manière directe de l'énergie du smectique :

$$p = - \frac{\partial \varepsilon}{\partial \theta} = - A \theta - C \frac{\partial u}{\partial z} + f' \frac{\partial E_x}{\partial x}$$

Nous avons vu que le procédé de détection sélectionnait le mode de Fourier d'ordre un du champ électrique. Ainsi, on pourra considérer que toutes les grandeurs du système varient comme

$$e^{jq_x x} \cos\omega t = e^{jq_x x} \left(\frac{e^{-j\omega t} + e^{j\omega t}}{2} \right)$$

Dans un premier temps, nous calculerons la réponse $u(-\omega)$ du smectique à une excitation de la forme $e^{jq_x x} e^{-j\omega t}$. L'expression complète de la déformation s'en déduira ensuite immédiatement.

Nous allons exprimer le tenseur des contraintes en fonction des viscosités que nous avons introduites au chapitre I-4 {[3]}.

$$\sigma^D_{xx} = j q_x (\alpha_0 + \alpha_4)\, v_x + \alpha_0 \frac{\partial v_z}{\partial z}$$

$$\sigma^D_{xz} = \frac{1}{2}\left(\alpha_4 + \overline{\alpha_{56}}\right)\left(\frac{\partial v_z}{\partial x} + \frac{\partial v_x}{\partial z}\right) = \frac{1}{2}\,\eta_u \left(\frac{\partial v_x}{\partial z} + j q_x v_z\right)$$

$$\sigma^D_{zx} = \sigma^D_{xz}$$

$$\sigma^D_{zz} = (\alpha_0+\alpha_1+\alpha_4+2\overline{\alpha_{56}}+\alpha_7)\frac{\partial v_z}{\partial z} + (\alpha_0+\alpha_7)\frac{\partial v_x}{\partial x} = \eta_v \frac{\partial v_z}{\partial z} + (\alpha_0+\alpha_7)\frac{\partial v_x}{\partial x}$$

Le smectique est décrit par les quatre variables v_x, v_z, u et θ. On connaît leur dépendance en x et en t. Il ne reste plus qu'une seule inconnue : z.

L'expression des équations du mouvement en fonction de ces seules variables s'écrit :

$$\begin{cases} j q_x v_x + \dfrac{\partial v_z}{\partial z} = -j\omega\theta \\[2ex] -j\omega u - v_z = \lambda_p \left(B \dfrac{\partial^2 u}{\partial z^2} + C \dfrac{\partial \theta}{\partial z} - f \dfrac{\partial^2 E_x}{\partial x \partial z}\right) \\[2ex] -j\rho\omega v_z = (C+A)\dfrac{\partial \theta}{\partial z} + (B+C)\dfrac{\partial u}{\partial z} + j q_x \eta_u \left(\dfrac{\partial v_x}{\partial z} + j q_x v_z\right) \\ \qquad + \eta_v \dfrac{\partial^2 v_z}{\partial z^2} + j(\alpha_0+\alpha_7) q_x \dfrac{\partial v_x}{\partial z} - (f+f')\dfrac{\partial^2 E_x}{\partial x \partial z} \\[2ex] -j\omega\rho v_x = j q_x A\theta + j q_x C \dfrac{\partial u}{\partial z} - q_x^2(\alpha_0+\alpha_4)v_x + j q_x \alpha_0 \dfrac{\partial v_z}{\partial z} \\ \qquad + \dfrac{1}{2}\eta_u \left(\dfrac{\partial^2 v_x}{\partial z^2} + j q_x \dfrac{\partial v_z}{\partial z}\right) - f' \dfrac{\partial^2 E_x}{\partial x^2} \end{cases}$$

4 - RESOLUTION DES EQUATIONS D'EVOLUTION

Les équations précédentes admettent une solution unique si on les complète par les conditions aux limites appropriées.

Elles s'écrivent :

$$\left.\begin{array}{l} - \; v_x = v_z = u = 0 \\ - \; \sigma_{zz} \quad \text{continu} \end{array}\right\} \text{en } z = 0 \quad \text{et} \quad z = D$$

Leur expression générale nécessite la résolution d'un système de huit équations à huit inconnues, qui ne se prête pas aisément à l'expression des résultats sous forme analytique. Cependant, un certain nombre de remarques permettent de simplifier considérablement le problème :

- En premier lieu, dans le domaine d'ordre de grandeur où nos expériences ont été réalisées, le phénomène de perméation est entièrement négligeable. Celui-ci intervient pour $q_z >> q_x$ (dans nos expériences $q_z \lesssim q_x$), et de manière plus subtile dans une couche limite près des parois dans le cas du mode d'ondulation {5}. Cette couche limite serait susceptible de jouer un rôle à basse fréquence dans nos expériences

$$\left(\omega < \left(\frac{\lambda_p}{\nu_z}\right)^{1/2} B\, q_x \text{ , soit } \omega \lesssim 10^3 \text{ rd s}^{-1}\right)$$

mais la correction qu'elle apporterait à la section efficace de diffusion ($\simeq 1\,\%$) est négligeable et sans rapport avec nos observations expérimentales. Il est donc légitime de poser $\lambda_p = 0$.

- De plus, les fréquences auxquelles sont conduites nos expériences sont toutes très faibles devant celles auxquelles se produit la résonance du premier son. Dans ces conditions le smectique peut être considéré comme incompressible. Nous reproduisons en annexe les calculs correspondants : ils montrent l'existence d'une couche limite de nature entièrement visqueuse dans laquelle de forts gradients de vitesse permettent de satisfaire à la fois les conditions aux limites sur v_x et sur v_z. Le détail des considérations concernant la perméation y est aussi exposé.

L'essentiel des résultats nécessaires à l'interprétation de nos mesures expérimentales est en fait contenu dans une analyse en modes propres, que nous donnons dans le paragraphe suivant.

De $\lambda_p = 0$ il résulte : $v_z = -j\omega u$. Cette égalité et la première équation nous permettent d'éliminer les variables θ et v_z. Nous obtenons alors le système de deux équations :

$$a u + b \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} = c \frac{\partial v_x}{\partial z} - (f' + f) \frac{\partial^2 E_x}{\partial z \partial x}$$

$$d\, v_x + e \frac{\partial^2 v_x}{\partial z^2} = g \frac{\partial u}{\partial z} - f' \frac{\partial^2 E_x}{\partial x^2}$$

avec les notations suivantes :

$a = -\rho\omega^2 - j\,\omega\eta_u\, q_x^2$ $\qquad$ $d = -j\,\rho\omega + (\alpha_o + \alpha_4) q_x^2 + j \dfrac{A q_x^2}{\omega}$

$b = -2C - A - B + j\,\omega\eta_v$ $\qquad$ $e = -\eta_u$

$c = -(C+A) q_x \omega^{-1} + j(\eta_u + \alpha_o + \alpha_7) q_x$ $\qquad$ $g = j\,A q_x + j\,C q_x + (\eta_u + \alpha_o)\omega\, q_x$

L'élimination de v_x conduit à une équation différentielle du quatrième ordre en u :

$$a u + \frac{db - ea - cg}{d} \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} + \frac{eb}{d} \frac{\partial^4 u}{\partial z^4} = -\frac{cf'}{d} \frac{\partial^3 E_x}{\partial x^3 \partial z} - \frac{(f+f')}{d} \left[d \frac{\partial^2 E_x}{\partial x \partial z} + e \frac{\partial^4 E_x}{\partial z^3 \partial x} \right]$$

A - Calcul des termes de source

La répartition spatiale du champ électrique créé par les électrodes a été calculée par PROST et PERSHAN {11}. Ils l'ont exprimée sous la forme d'une somme de différents modes. Mais en réalité, nous ne mesurons que la distorsion du smectique induite par le mode en $e^{iq_x x}$. Sa dépendance en z est exponentielle :

$$E_x(q_x) \sim e^{-Kz} \qquad \text{où} \qquad K = (\varepsilon_\perp^o / \varepsilon_{/\!/}^o)^{1/2}\, q_x$$

ε^o est le tenseur diélectrique à la fréquence du champ électrique.

Regroupons les termes de source en $f' \dfrac{\partial E_x}{\partial z}$:

$$q_x^2 \frac{c}{d} - j\, q_x = -j\, q_x + q_x^3 \frac{-(C+A) + j(\eta_u + \alpha_o + \alpha_7)\omega}{-j\,\rho\omega^2 + (\alpha_o + \alpha_4) q_x^2 \omega + j A q_x^2}$$

Nos expériences se font à des fréquences bien plus basses que la fréquence du son habituel $\nu = 1/2\Pi \sqrt{A/\rho}\; q_x$. Il est donc légitime de prendre dans cette expression la limite pour ω tendant vers 0. Dans ces conditions, le terme en $\partial^3 E_x / \partial z^3$ est négligeable et la force extérieure s'exerçant

sur le smectique est proportionnelle à :

$$j q_x \left[f' \frac{C}{A} - f \right] e^{-Kz} \sim h e^{-Kz}$$

B - Calcul des coefficients de l'équation différentielle

La réponse du smectique A est la solution de l'équation :

$$au + \frac{db + ea - cg}{d} \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} + \frac{eb}{d} \frac{\partial^4 u}{\partial z^4} = h e^{-Kz}$$

Dans le calcul des coefficients, nous considèrerons toujours que nous sommes loin de la résonance du premier son. Les termes dépendant de la fréquence sont petits devant les constantes élastiques. Ainsi, le dénominateur d est proportionnel à $-\rho\omega^2 + A q_x^2 - j(\alpha_0+\alpha_4)\omega q_x^2$.

$$A \sim 10^{10} \text{ cgs} \qquad \omega < 2\Pi\ 10^6 \text{ Hz}$$

$$q_x^2 \sim 10^5$$

L'ordre de grandeur du terme en $\rho\omega^2/Aq_x^2$ est inférieur à 10^{-2}. Il est donc légitime de faire un développement limité d'ordre un de 1/d :

$$\frac{1}{d} = -\frac{j\omega}{Aq_x^2} \left(1 + \frac{\rho\omega^2}{Aq_x^2} + j \frac{(\alpha_0 + \alpha_4)}{A} \omega \right)$$

Cela nous conduit aux expressions suivantes des coefficients de l'équation différentielle :

$$* \quad a = -\rho\omega^2 - j\omega\eta_u q_x^2 = -\rho\omega_0^2$$

$$* \quad \frac{db + ea - cg}{d} = -\tilde{B} + \rho\omega^2 \left(1 + \frac{C}{A}\right)^2 q_x^{-2} + j\tilde{\eta}\omega = -\frac{\rho\omega_1^2}{q_x^2}$$

$$* \quad \frac{eb}{d} = -j\omega\eta_u \frac{2C + A + B}{Aq_x^2} = j\rho\omega_2^2 q_x^{-4}$$

où nous avons posé :

$$\tilde{B} = B - \frac{C^2}{A} \; ; \; \tilde{\eta} = \eta_v - (2\eta_u + \alpha_0)\left(1 + \frac{C}{A}\right) + (\alpha_0 + \alpha_4)\left(1 + \frac{C}{A}\right)^2$$

Ainsi, la réponse du smectique est la solution de l'équation différentielle suivante :

$$-\rho\omega_0^2\, u - \rho\,\frac{\omega_1^2}{q_x^2}\,\frac{\partial^2 u}{\partial z^2} + j\,\rho\,\frac{\omega_2^2}{q_x^4}\,\frac{\partial^4 u}{\partial x^4} = h\,e^{-Kz}$$

C - Résolution de l'équation

Le second son est un mode d'oscillation de l'épaisseur des couches à densité pratiquement constante. Comme sa vitesse est beaucoup plus faible que celle des ondes de cisaillement dans le verre, il est totalement réfléchi à l'interface solide-cristal liquide.

Le smectique est ainsi parcouru par un système d'ondes réfléchies qui interfèrent entre elles. La condition pour que cette interférence soit constructive est que la composante q_z du vecteur d'onde du second son soit égale à un nombre entier de Π/D où D est l'épaisseur de l'échantillon.

Nous pouvons donc décomposer u en série de Fourier:

$$u(z,t) = \sum_{n=1}^{\infty} u_n \sin\left(\frac{n\Pi}{D}\, z\right) e^{-j\omega t}$$

Remarquons que cette formulation de u vérifie bien deux des conditions aux limites :

$$u(0) = u(D) = 0$$

$$v_z(0) = \frac{\partial u}{\partial t}(0) = v_z(D) = 0$$

Par contre v_x s'exprime alors en série de cosinus et l'égalité :

$$v_x(0) = v_x(D) = 0$$

n'est pas vérifiée.

Comme dans le mode d'ondulation des couches étudié par DE GENNES {[5]}, l'existence d'une couche limite permet de tenir compte de cette condition aux surfaces (voir appendice).

L'expression de u_n s'obtient directement à partir de l'équation différentielle :

$$u_n = \frac{2}{D}\,\frac{\int_0^D h\,e^{-KD}\,\sin\left(n\Pi/D\; z\right) dz}{\left(-\rho\omega_0^2 + \rho\omega_1^2\,\frac{n^2\Pi^2}{D^2 q_x^2} + j\,\rho\omega_2^2\,\frac{1}{q_x^4}\,\frac{n^4\Pi^4}{D^4}\right)}$$

ou encore :

$$u_n = \frac{2n\Pi h}{D^2K^2} \frac{1 - (-1)^n e^{-KD}}{\left(1 + \frac{n^2\Pi^2}{D^2}\right)\left(-\rho\omega_0^2 + \frac{\rho\omega_1^2}{q_x^2}\frac{n^2\Pi^2}{D^2} + j\rho\omega_2^2 \frac{n^4\Pi^4}{D^4 q_x^4}\right)}$$

Par l'intermédiaire du couplage flexoélectrique, un champ électrique proportionnel à $e^{iq_x x}\, e^{-i\omega t}\, e^{-Kz}$ provoque, dans le volume du smectique, un déplacement des couches u(x,z,t) égal à :

$$u(x,z,t) = \frac{h}{D} e^{jq_x x} e^{-j\omega t} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \frac{n\Pi}{DK^2} \frac{\left(1-(-1)^n e^{-KD}\right)\sin\left(\frac{n\Pi}{D} z\right)}{\left(1+\frac{n^2\Pi^2}{D^2K^2}\right)\left(-\rho\omega_0^2+\frac{\rho\omega_1^2}{q_x^2}\frac{n^2\Pi^2}{D^2}+j\rho\frac{\omega_2^2}{q_x^4}\frac{n^4\Pi^4}{D^4}\right)}$$

5 - RESONANCES DU SECOND SON

Dans la limite hydrodynamique, l'amplitude de l'onde diffusée par la distorsion du smectique est proportionnelle à la transformée de Fourier du déplacement des couches :

$$u(q_z) = \int_0^D u(z)\, e^{-iq_z z}\, dz$$

$$= \sum_{-\infty}^{+\infty} u_n \frac{n\Pi}{Dq_z^2} \frac{\left[(-1)^n e^{-iq_z D} - 1\right]}{1 - \frac{n^2\Pi^2}{D^2 q_z^2}}$$

Dans l'expression de u_n il intervient un terme en e^{-KD} que l'on peut négliger devant 1 avec une très bonne approximation.

En effet, D est l'épaisseur de l'échantillon et varie autour de 500 µm ; K est peu différent de q_x qui est lui-même égal à 200 Π cm^{-1}. Ainsi $DK \sim 10\,\Pi$.

$$u(q_z) = \frac{h}{D} \sum_{-\infty}^{+\infty} \frac{n^2\Pi^2}{D^2K^2q_z^2} \frac{\left[(-1)^n e^{-iq_z D} - 1\right]}{\left(1+\frac{n^2\Pi^2}{D^2K^2}\right)\left(1-\frac{n^2\Pi^2}{D^2q_z^2}\right)\left(-\rho\omega_0^2+\frac{\rho\omega_1^2}{q_x^2}\frac{n^2\Pi^2}{D^2}+j\rho\frac{\omega_2^2}{q_x^4}\frac{n^4\Pi^4}{D^4}\right)}$$

Cette expression peut se mettre sous la forme de deux séries :

$$u(q_z) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} F(n) + \sum_{n=-\infty}^{+\infty} (-1)^n F(n)$$

où :

$$F(\xi) = \frac{h}{D^3} \frac{\xi^2\Pi^2}{K^2 q_z^2} \frac{1}{\left(1+\frac{\xi^2\Pi^2}{D^2K^2}\right)\left(1-\frac{\xi^2\Pi^2}{D^2 q_z^2}\right)\left(-\rho\omega_0^2 + \frac{\rho\omega_1^2}{q_x^2}\frac{\xi^2\Pi^2}{D^2} + j\rho\frac{\omega_2^2}{q_x^4}\frac{\xi^4\Pi^4}{D^4}\right)}$$

Les points $\xi = n$ ($n = -\infty, +\infty$) sont les pôles simples des fonctions cotg $n\Pi$ et $1/\sin n\Pi$. Ils ont pour résidus 1 pour la cotg et $(-1)^n$ pour le $\sin^{-1}$.

Considérons donc les deux intégrales curvilignes suivantes :

$$-\oint_C \frac{2h\Pi}{D^2}\frac{\xi^2\Pi^2}{D^2K^2q_z^2} \frac{\operatorname{cotg}\xi\Pi}{\left(1+\frac{\xi^2\Pi^2}{D^2K^2}\right)\left(1-\frac{\xi^2\Pi^2}{D^2q_z^2}\right)\left(-\rho\omega_0^2+\rho\frac{\omega_1^2}{q_x^2}\frac{\xi^2\Pi^2}{D^2}+j\rho\frac{\omega_2^2}{q_x^4}\frac{\xi^4\Pi^4}{D^4}\right)}$$

$$+\oint_C \frac{2h\Pi}{D^2}\frac{\xi^2\Pi^2}{D^2K^2q_z^2} \frac{\frac{1}{\sin\xi\Pi}}{\left(1+\frac{\xi^2\Pi^2}{D^2K^2}\right)\left(1-\frac{\xi^2\Pi^2}{D^2q_z^2}\right)\left(-\rho\omega_0^2+\rho\frac{\omega_1^2}{q_x^2}\frac{\xi^2\Pi^2}{D^2}+j\rho\frac{\omega_2^2}{q_x^4}\frac{\xi^4\Pi^4}{D^4}\right)}$$

Le contour est un cercle de rayon R ne passant par aucun des pôles de la fonction. Quand $R \to \infty$ il est clair que l'intégrale tend vers 0 ($F(R) \sim 1/R^6$ et le numérateur reste borné loin de ses pôles).

Les résidus correspondant aux pôles de la cotangente et du $\sin^{-1}$ ont pour somme $u(q_z)$, qui n'est donc que l'opposé de la somme des résidus des pôles des dénominateurs.

Il y en a huit qui se groupent deux à deux :

$$\xi^{-1} = \pm i\frac{\Pi}{DK} \qquad \xi^{-1} = \pm\frac{\Pi}{Dq_z}$$

et les quatre qui annulent :

$$-\rho\omega_0^2 + \rho\frac{\omega_1^2}{q_x^2}\frac{\xi^2\Pi^2}{D^2} + j\rho\frac{\omega_2^2}{q_x^4}\frac{\xi^4\Pi^4}{D^4}$$

Posons $q_1^2 = \frac{\xi^2 \Pi^2}{D^2}$.

Les solutions de l'équation $j\omega_2^2 \frac{q_1^4}{q_x^4} + \omega_1^2 \frac{q_1^2}{q_x^2} - \omega_0^2 = 0$ peuvent s'écrire :

$$(q_1^{\pm})^2 = \frac{-\omega_1^2 \pm \sqrt{\omega_1^4 + 4j\omega_0^2\omega_2^2}}{2j\omega_2^2} q_x^2$$

Le calcul des différents résidus est fastidieux mais standard. Il permet d'exprimer $u(q_z)$ sous la forme d'une somme de quatre termes :

$$u(q_z) = -\frac{hK}{q_z^2} \frac{\coth DK - \frac{e^{-iq_z D}}{\operatorname{sh} DK}}{\left(1+\frac{K^2}{q_z^2}\right)\left(-\rho\omega_1^2 - \rho\omega_1^2 \frac{K^2}{q_x^2} + j\rho \frac{\omega_2^2}{q_x^4} K^4\right)} \quad 1$$

$$+ \frac{hq_z}{K^2} \frac{i}{\left(1+\frac{q_z^2}{K^2}\right)\left(-\rho\omega_0^2 + \rho\omega_1^2 \frac{q_z^2}{q_x^2} + j\rho\omega_2^2 \frac{q_z^4}{q_x^4}\right)} \quad 2$$

$$+ j\frac{h}{K^2 q_z^2} \frac{q_x^2}{\rho\omega_2^2} \frac{q_1^+}{\left(1+\frac{q_1^{+2}}{K^2}\right)\left(1-\frac{q_1^{+2}}{q_z^2}\right)\left(\frac{q_1^{+2}}{q_x^2} - \frac{q_1^{-2}}{q_x^2}\right)} \frac{\cot g\, q_1^+ D - \frac{e^{-iq_z D}}{\sin q_1^+ D}}{} \quad 3$$

$$- j\frac{h}{K^2 q_z^2} \frac{q_x^2}{\rho\omega_2^2} \frac{q_1^-}{\left(1+\frac{q_1^{-2}}{K^2}\right)\left(1-\frac{q_1^{-2}}{q_z^2}\right)\left(\frac{q_1^{+2}}{q_x^2} - \frac{q_1^{-2}}{q_x^2}\right)} \frac{\cot g\, q_1^- D - \frac{e^{-iq_z D}}{\sin q_1^- D}}{} \quad 4$$

Nous avons étudié l'importance relative de ces différents termes en fonction de la fréquence et des valeurs de la constante élastique de compression des couches $\tilde{B}$, de q_z et des viscosités η_u et $\tilde{\eta}$.

Le dernier terme est toujours négligeable. Le premier exprime la réponse forcée du smectique à une excitation en e^{-Kz}. Son module présente une allure amortie en fonction de la fréquence comme on peut le voir sur la figure I-9.

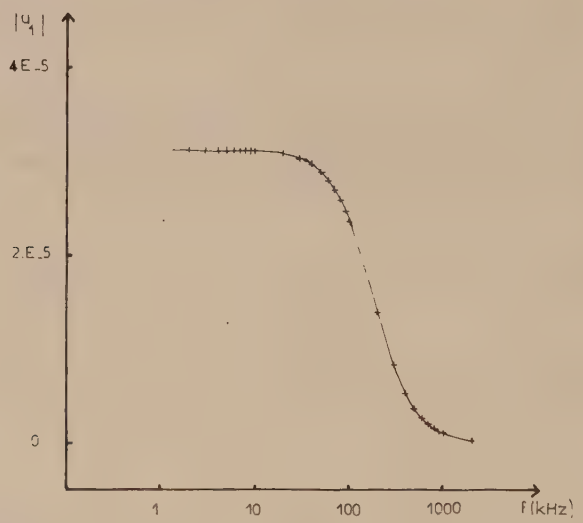


Figure I-9a : Réponse forcée du smectique.
$\tilde{B} = 5.10^6$ $q_z = \Pi/D$ $\eta_u = 1$ poise.
Elle présente toujours la même allure amortie.

En fait ce sont les deux autres termes qui ont le plus d'importance dans la réponse du smectique. Le second est principalement lié au mode de détection optique, et le troisième en donne la partie mécanique.

On peut montrer que la partie "optique" du smectique est proportionnelle à :

$$\frac{1}{1 - \frac{\omega^2}{\omega_s^2} - j\,\frac{\omega}{\omega_r}}$$

où : $\omega_s^2 = \dfrac{\tilde{B}\, q_z^2\, q_x^2}{\rho(q_x^2+q_z^2)}$ et $\omega_r = \dfrac{q_z^2\, \tilde{B}}{\eta_u\, q_x^2}$

lorsque q_z est faible devant q_x et lorsque le couplage avec le son normal peut être négligé ($C \ll A$).

Quand $\omega_s > \sqrt{2}\ \omega_r$, la réponse est amortie en fonction de la fréquence. Elle a l'allure typique donnée sur la figure I-9b. La valeur de ce terme à basse fréquence est inversement proportionnelle à $\tilde{B}$. Par contre lorsque $\omega_s < \sqrt{2}\ \omega_r$ (ce qui a lieu pour de plus fortes valeurs de $\tilde{B}$) la réponse présente un maximum à la fréquence :

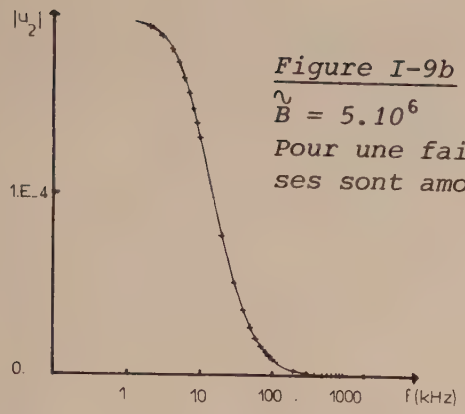


Figure I-9b : Réponse "optique" :
$\tilde{B} = 5.10^6$ $q_z = \Pi/D$ $\eta_u = 1$ poise.
Pour une faible valeur de $\tilde{B}$ ces deux réponses sont amorties.

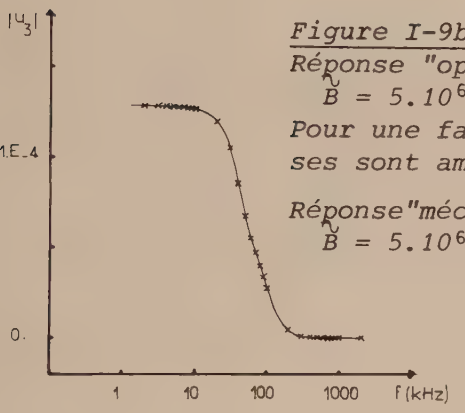


Figure I-9b :
Réponse "optique" :
$\tilde{B} = 5.10^6$ $q_z = \Pi/D$ $\eta_u = 1$ poise.
Pour une faible valeur de $\tilde{B}$ ces deux réponses sont amorties.

Réponse "mécanique":
$\tilde{B} = 5.10^6$ $q_z = \Pi/D$ $\eta_u = 1$ poise.

$$\nu_m = \frac{1}{2\Pi}\left(\omega_s^2 - \frac{\omega_s^4}{2\omega_r^2}\right)^{1/2} \qquad \text{(figure I-10a)}$$

Le facteur $(1 - q_1^{+2}/q_z^2)$ du troisième terme est proportionnel au dénominateur de la réponse "optique" du smectique ($q_z << q_x$).

Pour des valeurs de q_z proportionnelles à $n\,\Pi/D$, la réponse mécanique ne présente pas de résonance lorsque $q_z^2 = q_1^{+2}$: le numérateur s'annule aussi. Par contre ce terme résonne pour :

$$q_1^+ = (n \pm 1)\frac{\Pi}{D} \qquad \text{(figure I-10)}$$

Ainsi, la réponse totale du smectique présente en général trois résonances successives dont la position dépend à la fois de $\tilde{B}$ et de q_z et dont la largeur est surtout fonction de la viscosité η_u.

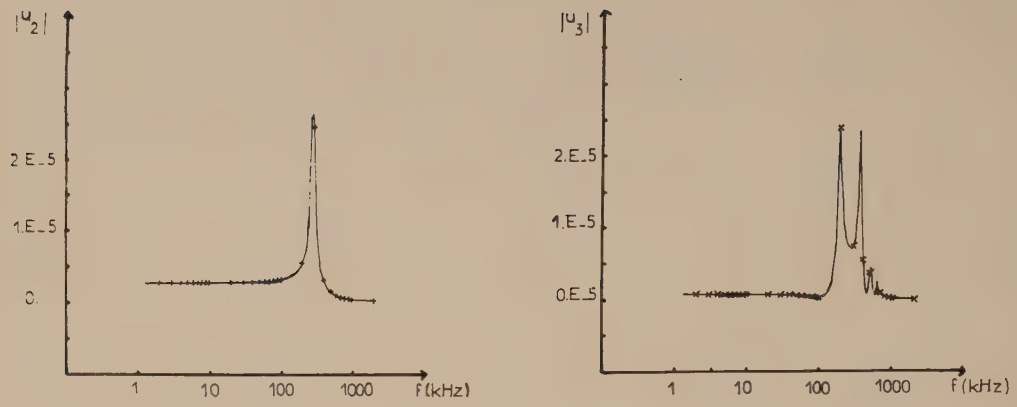


Figure I-10a :
Réponse "optique" :
$\tilde{B} = 10^8$ $\eta_u = 0.3$ poise $q_z = 3\Pi/D$.
Elle présente un pic pour $\nu = \sqrt{B q_z}/2\Pi\rho \sim 300$kHz.

Réponse "mécanique" :
$\tilde{B} = 10^8$ $\eta_u = 0.3$ poise $q_z = 3\Pi/D$.
Elle présente deux résonances aux fréquences de 200 kHz et 375 kHz qui correspondent à :

$q_1^+ = 2\Pi/D$ et $q_1^+ = 4\Pi/D$

Pour $q_1^+ = 3\Pi/D$, *la réponse "acoustique" ne résonne pas.*

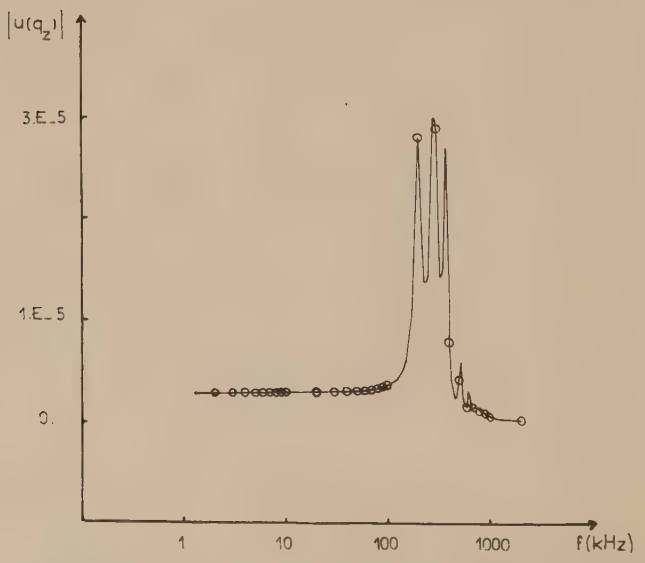


Figure I-10b : Module de la fonction de réponse du smectique à une excitation en $e^{-i\omega t}$. *C'est essentiellement la somme des deux réponses mécaniques et "optiques". Elle comporte trois belle résonances pour des fréquences correspondant à :*

$q_1^+ = 2\Pi/D$, $q_1^+ = 3\Pi/D = q_z$, $q_1^+ = 4\Pi/D$.
$\tilde{B} = 10^8$ ucgs , $\eta_u = 0.3$ poise , $q_z = 3\Pi/D$.

La mesure des fréquences maximales donne une détermination de la vitesse du second son pour un faible q_z, c'est-à-dire pour un angle entre le vecteur d'onde acoustique et la normale aux couches bien supérieur à 45°.

D'autre part, d'après les théories existantes, la constante de compression des couches $\hat{B}$ s'annule à la transition N-S_A. Une étude en fonction de la température doit permettre l'observation progressive du passage d'un comportement résonant de la fonction de réponse à un comportement purement amorti très près de la transition.

Cette analyse de la fonction de réponse du smectique à une excitation en $e^{-i\omega t}$ est valable pour la réponse totale à un champ électrique variant en cosωt. En effet, le système que nous avons résolu étant linéaire, l'expression générale de $u(q_z)$ s'écrit :

$$u(q_z) = \frac{1}{2}\left[u(q_z,-\omega)\, e^{-i\omega t} + u(q_z,+\omega)\, e^{i\omega t}\right]$$

où $u(q_z,-\omega)$ a la forme que nous avons donnée et où $u(q_z,+\omega)$ s'en déduit directement en changeant ω en $-\omega$.

Ces deux termes présentent les mêmes résonances mais par contre n'ont pas la même phase.

Dans la seconde partie de cette thèse, nous allons décrire le montage expérimental et la détection de la déformation du smectique. Nous donnerons alors la forme complète du signal que nous mesurons et nous pourrons la comparer aux différents termes que nous venons d'étudier.

Bibliographie

1 - DE GENNES P.G., *J. de Physique*, 30, C4 (1969).

2 - MARTIN P.C., PARODI O., PERSHAN P.S., *Phys. Rev. A6*, 2401 (1972).

3 - DE GENNES P.G., *"The Physics of Liquid Crystals"*, *Clarendon Oxford Press (1974)*.
Voir aussi : LANDAU L., LIFCHITZ E., *"Physique Statistique"*, *Editions MIR, Moscou (1967)*.

4 - LE PESANT J.P., *Thèse de Doctorat d'Etat, Paris (1978)*.

5 - DE GENNES P.G., *The Phys. of Fluids*, 17, 1645 (1974).

6 - W. HELFRICH, *Phys. Rev. Lett.* 23, 372 (1969).

7 - LIAO Y., CLARK N., PERSHAN P.S., *Phys. Rev. Lett.* 30, 639 (1973).

8 - BROCHARD F., *J. de Phys.* 36, 315 (1975).

9 - BACRI J.C., *J. de Phys.* 37, C3 (1973).

10 - MEYER R.B., *Phys. Rev. Lett.* 22, 918 (1969).

11 - PROST J., PERSHAN P.S., *J. Appl. Phys.* 47, 6 (1976).

12 - MARCEROU J.P., *Thèse de Spécialité, n° d'ordre 1412, Bordeaux (1978)*.

13 - MARCEROU, J.P., PROST J., *Mol. Cryst. Liq. Cryst. (1978) à paraître*.

14 - BIRECKI H., SCHAETZING R., RONDELEZ F., LITSTER, J.D., *Phys. Rev. Lett.* 36, 1376 (1976).

15 - DAVIDOV D., SAFINYA C.R., KAPLAN M., DANA S.S., SCHAETZING R., BIRGENEAU, R.J., LITSTER J.D., *Phys. Rev.* 19B, 1657 (1979).

16 - LIU M., *Phys. Rev. A* 19, 2090 (1979).

Chapitre II

MONTAGE EXPERIMENTAL

Dans la première partie, nous avons exposé le principe de la technique interdigitale. Nous allons maintenant nous pencher sur sa réalisation et étudier en détail divers éléments du montage expérimental. Les théories des transitions de phase sont valides à des températures proches de la température critique, ce qui justifie la mise au point d'une régulation de température d'une stabilité de l'ordre du millième de degré, pour étudier de manière précise la transition nématique - smectique A .

Nous exposerons aussi la méthode de fabrication des échantillons monocristallins de smectique ainsi que la détection et l'analyse du signal diffusé.

I - DESCRIPTION GENERALE DU MONTAGE EXPERIMENTAL

Nous avons utilisé un montage expérimental semblable à celui mis au point par PROST et PERSHAN {[1]}. Il se compose essentiellement d'un échantillon de smectique orienté, placé dans une enceinte thermostatée et éclairé par une source laser. Le premier ordre de diffraction de la lumière diffusée est recueilli sur un photomultiplicateur relié à une détection synchrone.

En fait, nous avons fait notre étude sur deux composés smectiques et avec deux montages différents. Pour nos expériences sur l'octylcyanobiphényl (8CB) nous avons utilisé un dispositif existant déjà au laboratoire et mis au point par PROST et MARCEROU {[2]}. Puis nous avons étudié l'octyloxycyanobiphényl (8OCB) avec le montage expérimental dont nous allons décrire successivement les différents éléments. Il est semblable à l'autre dans son principe mais comporte quelques améliorations.

1 - SOURCES LUMINEUSES

Dans un premier temps nous avons utilisé un laser He-Ne (modèle 124 A Spectra Physics ; puissance 15 mW ; longueur d'onde 623,8 nm ; stabilité 5 % sur une journée).

Cette précision ne nous suffit pas lorsque nous étudions le composé à une température proche de la température critique et, dans la plupart de nos expériences, nous nous sommes servis d'un laser à Argon (modèle 165 Spectra Physics) dont l'intensité est asservie électroniquement, ce qui lui confère une stabilité de 0,5 % sur une demi-heure.

Nous avons toujours utilisé la raie verte de longueur d'onde $\lambda = 5145$ Å avec une puissance de 0,2 W environ que nous avons réduite jusqu'à 10 mW au niveau de l'échantillon par un jeu de verres gris.

La divergence des faisceaux des deux lasers est inférieure à un milliradian et ils peuvent être focalisés sur une aire de 100 µm de diamètre. Leur polarisation est rectiligne et ils sont monomodes transversaux TEM 00.

2 - LE MONTAGE OPTIQUE

Le montage optique est visualisé dans son ensemble sur la figure II-1. Le faisceau laser est focalisé par le jeu de lentilles L sur la photocathode du photomultiplicateur. Il éclaire l'échantillon placé dans le four thermostaté sur une aire de 10 mm^2 environ. L'ordre un de la tache de diffraction est sélectionné par un diaphragme de 100 µm de diamètre (légèrement inférieur à une aire de cohérence de la lumière diffusée par l'échantillon) placé devant la photocathode du photomultiplicateur (modèle EMI 9558 F) sélectionné pour sa capacité d'accepter un fort niveau lumineux.

Un amplificateur à détection synchrone permet ensuite de trier le signal dont la fréquence est identique à celle du voltage appliqué aux électrodes.

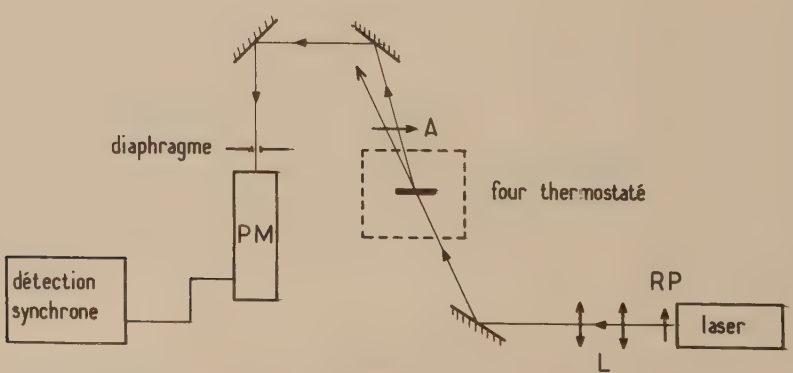


Figure II-1 : Schéma général du montage optique dans un plan vertical. RP est un rotateur de polarisation ; A un analyseur.

A la sortie du laser un rotateur de polarisation RP donne à l'onde lumineuse incidente la polarisation voulue. Celle de l'onde diffusée est sélectionnée par l'analyseur A.

L'ensemble du montage est vissé sur une table métallique isolée des vibrations du sol par une suspension pneumatique. La fréquence de coupure des vibrations mécaniques est de quelques Hertz et cette installation permet de réduire le bruit basse fréquence qui peut être assez important puisque l'on focalise le faisceau lumineux sur un diaphragme de 100 µm de diamètre.

II - LA REGULATION THERMIQUE

Pour pouvoir étudier la transition nématique - smectique A des composés usuels (8CB, 80CB, CB0OA, etc...) il est nécessaire de posséder une cellule thermostatée avec une bonne précision sur une plage de température allant de l'ambiante (30°C) à 120°C environ. Celle que nous avons utilisée a été construite au laboratoire par Messieurs PIAUD et AUDIN et mise au point par nos soins. Elle possède vers 70°C une stabilité de ± 1 à 1.5 millième de degré sur une journée.

1 - L'ENCEINTE THERMIQUE

Une telle régulation exige l'emploi de deux enceintes thermiques : l'enceinte extérieure protège le coeur du four des variations de l'atmosphère environnante ; l'enceinte intérieure, régulée avec peu de puissance, affine la stabilisation en température et compense les pertes thermiques. La figure II-2 donne une coupe de ces deux "fours" à l'intérieur de leur boitier.

L'enceinte extérieure et le boitier possèdent chacun deux fenêtres permettant une inclinaison des faisceaux lumineux incidents et diffusés de 0° à 17° environ. Celles de l'enceinte extérieure sont plus étroites pour minimiser les pertes thermiques mais elles sont décentrées par rapport à l'axe de symétrie du four. Tous ces hublots ont été fabriqués en verre de silice Herasil III (Heraeus), matériau qui présente peu de biréfringence et ne fluoresce pas dans le vert et dans le rouge.

L'observation de la figure II-2 montre que les deux enceintes sont isolées thermiquement. Les deux régulations sont ainsi mieux découplées et l'équilibre est plus stable. Par contre, cette situation présente l'inconvénient d'allonger les temps de descente de la température. Ce serait gênant pour des études dynamiques mais nous avons toujours fait nos mesures après stabilisation de la température.

L'enceinte intérieure est simplement soutenue par

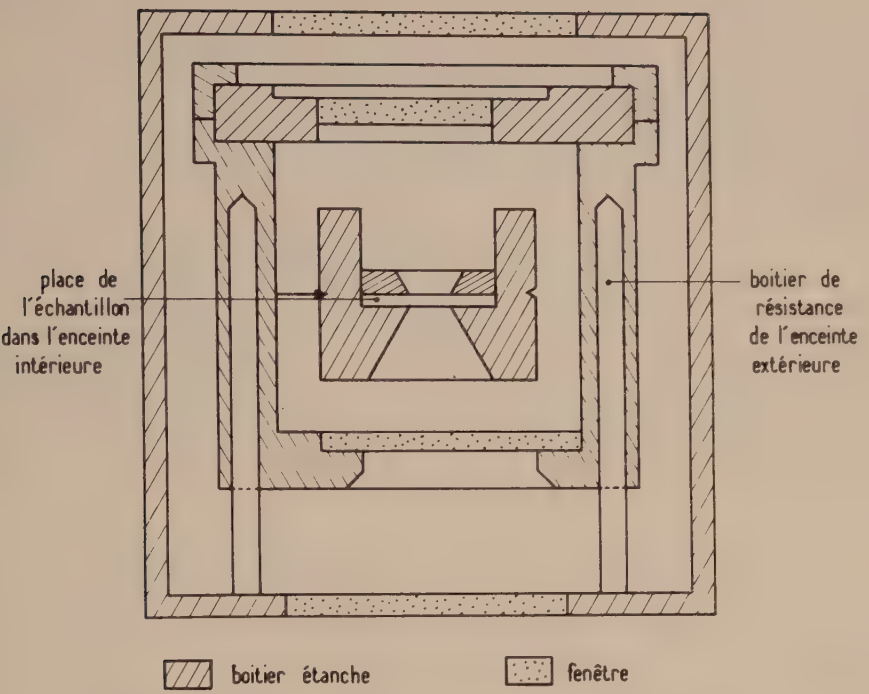
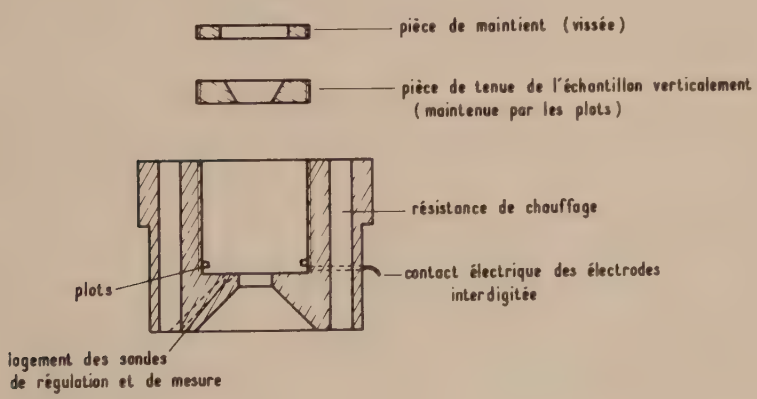


Figure II-2 : Coupe de la cellule thermostatée.



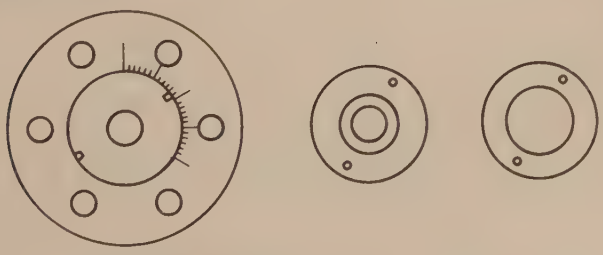


Figure II-3 :
a) Coupe de l'enceinte intérieure.
b) Vue de dessus.

trois vis creuses portant à leur extrémité une bille enduite de graisse au silicone. Ce dispositif lui confère une certaine liberté de rotation et l'on peut donner à l'échantillon (et donc aux électrodes) l'orientation voulue par rapport au faisceau incident. Pour pouvoir mesurer cet angle, la partie supérieure du "four" interne est graduée en degrés (figure II-3).

Ces deux enceintes sont chauffées par des résistances enduites de graisse au silicone pour assurer un meilleur échange thermique. Quant aux sondes de mesure de la température, ce sont des résistances de platine situées le plus près possible du coeur des deux enceintes de façon à saisir le plus rapidement possible les variations de température. L'ensemble des pièces mécaniques a été réalisé par J. VERGES.

2 - SYSTEME DE REGULATION ELECTRONIQUE

Ce système a été construit au laboratoire par Messieurs PIAUD et AUDIN. Il est formé de trois régulations indépendantes qui assurent respectivement le contrôle de la température des deux enceintes et du boitier de potentiomètres commandant la valeur de la température à l'équilibre. Cette dernière régulation se fait au centième de degré et minimise les variations de résistance des potentiomètres occasionnées par un changement de température de l'atmosphère environnante.

Le choix des potentiomètres n'est pas un problème trivial. En effet, les potentiomètres à bobines sont mal adaptés à la précision du 1/1000° de degré : le moindre parasite fait sauter le contact d'une spire à une autre et modifie la température du four.

La solution que nous avons finalement choisie consiste à afficher la température de l'enceinte intérieure à 0,2 degrés près à l'aide de trois potentiomètres à plots variant respectivement de 10 Ω, 1 Ω et 0,1 Ω d'une position à la suivante. Un dernier potentiomètre à spires de 0,1 Ω sert de réglage fin. Cette solution n'est pas tout à fait satisfaisante car elle ne supprime pas la difficulté d'affichage d'une température au millième de degré près. (Nous verrons comment nous procédons pour pallier cela). Pour résoudre complètement le problème des parasites nous avons isolé le système de régulation du secteur électrique du laboratoire.

Il est évident que ce dispositif ne donne pas un affichage absolu des températures. Cette exigence nécessiterait l'emploi de techniques beaucoup plus coûteuses : en

particulier l'utilisation de potentiomètres au mercure baignant dans l'huile {[4]}.

Le système électronique de régulation de la température est classiquement fondé sur l'amplification d'un signal d'erreur obtenu aux bornes d'un pont de wheastone alternatif (figure II-4). (La fréquence de 400 Hz est choisie

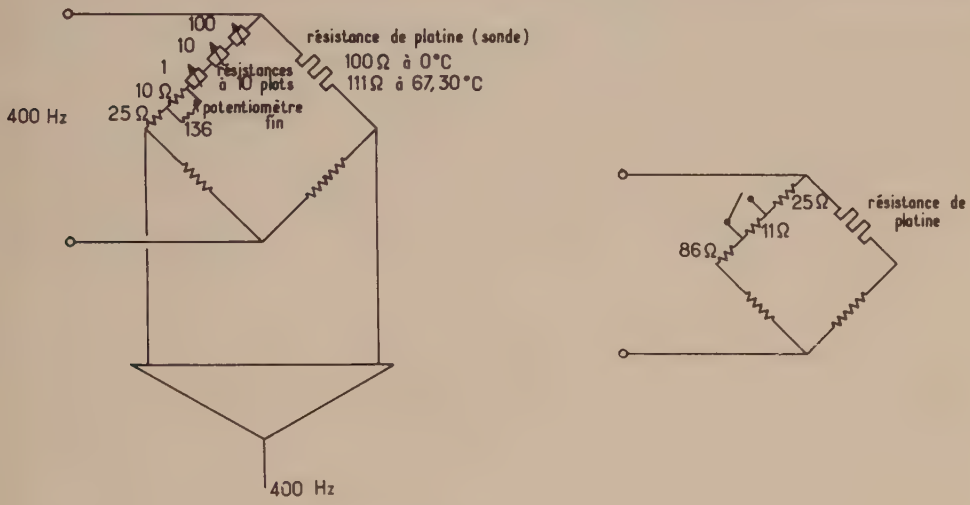


Figure II-4 :
a) Schéma du pont de la régulation de l'enceinte intérieure.
b) Schéma du pont de la régulation de l'enceinte extérieure.

pour annuler les effets thermoélectriques et minimiser le bruit en 1/f). Ce système utilise une puissance continue stable pour compenser les pertes thermiques. Le réglage du potentiomètre correspondant à l'enceinte intérieure permet un ajustement très facile des derniers millièmes de degré de la température à afficher, tout en restant à l'équilibre du pont.

3 - MESURE DES TEMPERATURES - ETALONNAGE

Les imperfections d'affichage de la température du four interne rendent obligatoire un système de lecture. Il est composé de trois thermistances (YSI 44030, 44034 et 44031) qui font respectivement 3 kΩ, 5 kΩ et 10 kΩ à 25°C. Elles ont été coulées dans de l'araldite haute température et logées dans une cavité tout près de l'échantillon dans l'enceinte intérieure. La valeur de leur résistance est lue sur un multimètre digital CIMRON (OHH 53) ($5^{1/2}$ digits). A une température donnée, la lecture la plus précise des trois

résistances varie de trois à six digits pour un millième de degré, ce qui est supérieur à l'incertitude du multimètre.

Nous avons vérifié la sensibilité et la stabilité de cette lecture en la comparant avec la mesure de température d'une sonde à quartz placée dans le four interne, à l'endroit même où se trouve l'échantillon.

Nous avons ainsi pu remarquer qu'elle dépendait fortement de la température du four extérieur, ce qui suggèrerait l'existence d'effets Thomson ou Pelletier à l'intérieur des fils de connection, l'importance des gradients étant certainement minime. La stabilité de cette lecture, tout comme d'ailleurs la stabilité de la régulation de l'enceinte intérieure est d'autant plus grande que l'écart de température entre les deux "fours" est plus faible (jusqu'à une certaine valeur à partir de laquelle le découplage entre les deux régulations devient si faible que le temps de réponse de la descente en température est trop long). Nous ne pouvons pas chiffrer cet écart optimal car nous ne possédons pas de lecture de la température de l'enceinte extérieure. Notre moyen de l'apprécier est la valeur du taux de puissance à envoyer sur les résistances pour compenser les pertes thermiques de l'enceinte intérieure.

Les résultats de l'étalonnage donnent au four les caractéristiques suivantes lorsque le couplage entre les deux régulations est optimal :

- la valeur de la température choisie peut varier entre 30°C et 122°C ;

- sa stabilité, lorsqu'elle est inférieure à 110°C, est de 0,2 m°K à court terme (1/4 d'heure environ) et de ± 1 m°K sur une demi-journée. Cette valeur inclut à la fois la dérive de la température de stabilisation du pont et la dérive de la lecture de la température ;

- cette lecture n'est pas absolue puisqu'elle dépend de la température de l'enceinte extérieure : un écart de 2°C fait varier la mesure lue à l'aide de la thermistance de 0,03°C autour de 67°C. Ce système de régulation-détection nécessite donc un étalonnage précis des températures utilisées en tenant compte du potentiomètre commandant la régulation extérieure.

III - DESCRIPTION DE L'ECHANTILLON

Dans la première partie l'échantillon de cristal liquide a été décrit sous la forme d'une goutte de smectique aligné de façon homéotrope entre une lame de verre et les électrodes interdigitées. Ce paragraphe sera consacré à sa préparation.

1 - CHOIX DE LA LAME DE VERRE

Le moindre défaut de surface d'une lame de verre induit une distorsion statique à longue distance dans un smectique. Malgré la couche de silice qui les recouvre, les électrodes que nous avons utilisées (et qui nous ont été gracieusement procurées par le laboratoire de visualisation de la Thomson CSF) ne sont pas totalement planes et elles créent ainsi des défauts dans l'échantillon. Nous avons essayé de limiter au maximum leur nombre en choisissant soigneusement l'autre lame de verre. Ainsi nous avons utilisé une plaque de silice (Hérasil I chez Héraeus) de poli-optique à $\lambda/10$ au moins, présentant un parallélisme meilleur que 10^{-4} et exempte de granulation.

2 - TRAITEMENT DE LA LAME ET DES ELECTRODES

Un bon alignement du cristal liquide exige une très grande propreté des lames de verre. Nous lavons celle de dessus avec de l'acide sulfochromique chaud selon une méthode empruntée à J.F. KAHN {[3]}.

Par contre, le nettoyage des électrodes est moins évident, car l'acide sulfochromique attaque la couche de silice et le métal des peignes sous-jacent. Nous commençons donc par enlever les grosses poussières en les piégeant dans un film de collodion déposé par évaporation d'une solution d'éther. Elles sont enlevées simultanément au film par simple arrachement. Nous vérifions qu'il n'en reste pas de visibles au microscope. Puis nous plongeons très rapidement les électrodes dans le mélange sulfochromique pour parfaire le nettoyage.

Lorsque les lames sont très propres, l'ancrage spontané des molécules se fait perpendiculairement à la surface. Néanmoins nous avons utilisé un surfactant : l'hexadécyltriméthylammonium bromide en solution dans de l'éthanol pur (7 mg pour 50 cm^3). Nous aspergeons de cette solution la lame recouverte d'un papier optique puis nous laissons sécher à l'abri des poussières.

Quant aux électrodes, elles nous étaient procurées recouvertes d'un silane facilitant l'alignement perpendiculaire.

Ce traitement nous a permis de fabriquer des échantillons de smectique de 500 µm d'épaisseur ne possédant pas de défauts visibles à l'oeil nu, la qualité de l'alignement obtenu étant de plus testée par l'estimation du taux d'extinction de l'onde laser après passage dans l'échantillon.

3 - MONTAGE DE L'ECHANTILLON

Le principe de fabrication de nos échantillons est très simple. Nous posons nos électrodes au fond de l'enceinte intérieure et nous relions l'un des peignes à un générateur de tension alternative par une soudure de laque d'argent. L'autre peigne est constamment à la masse. Nous plaçons ensuite une cale de téflon de 500 µm d'épaisseur sur les électrodes. Le cristal liquide est introduit en phase nématique avant la lame de verre supérieure et l'échantillon est maintenu par une rondelle de cuivre évidée qui se visse à l'extrémité supérieure de l'enceinte intérieure (figure II-5). La température du four est maintenue légèrement supérieure à la température de transition N-S_A et le nématique s'oriente en quelques minutes de façon uniforme sur la pastille de 5 mm de diamètre qui constitue l'échantillon de cristal liquide.

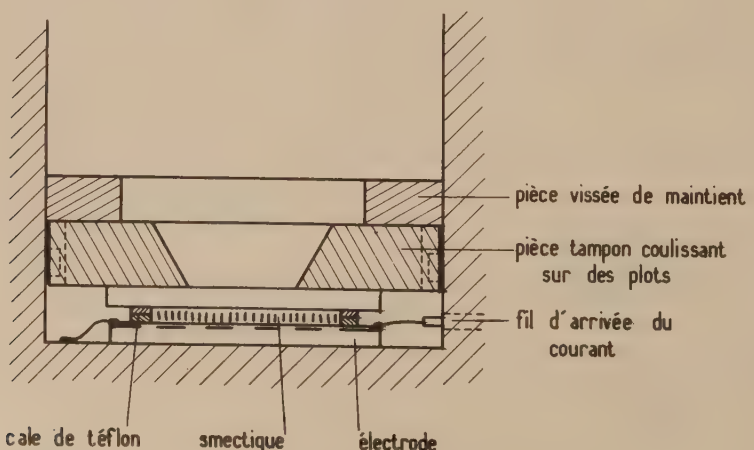


Figure II-5 : Coupe de l'échantillon de cristal liquide dans l'enceinte intérieure.

Pour éviter les effets de vieillissement, le smectique est laissé sous atmosphère d'Argon.

La pureté des produits est très importante lorsque l'on étudie les transitions de phase. Aussi nous les avons filtrés au préalable, puis tirés sous vide pour éliminer le plus possible les solvants qui subsistent toujours dans les produits industriels. TOutefois à cause de la fabrication assez délicate des échantillons il est difficile de s'affranchir totalement des poussières.

Dès que l'échantillon est fait, nous mesurons son épaisseur par conoscopie. La régularité de la raie d'extinction nous renseigne alors sur le parallélisme des deux lames de verre. L'épaisseur des échantillons de 8CB(respectivement 8OCB) était constante à 5 % près (respectivement 2 %).

IV - DIFFUSION DE LA LUMIERE ET DETECTION

Dans la première partie de cette thèse,nous avons montré comment, lorsqu'on applique un voltage sinusoïdal sur l'un des peignes des électrodes, - l'autre restant à la masse -, le couplage flexoélectrique crée une distorsion périodique du cristal liquide :

$$\sum_p \delta n_{p,x}(z)\, e^{ipq_x x}$$

Dans la limite hydrodynamique, cette distorsion est directement reliée au déplacement des couches u(x,z) que nous avons calculé. Puis nous avons décrit le dispositif expérimental de diffusion Rayleigh forcée que nous avons utilisé. La distorsion $\delta n_x(q_x)$ crée une modulation de l'indice de réfraction qui diffuse la lumière dans une direction bien définie. Il reste donc à étudier la détection de cette onde lumineuse.

Nous ne reprendrons pas le calcul de diffusion de la lumière par la déformation $\delta n_x(q_x,q_z)$ que l'on pourra trouver dans les références {1} et {2}. Nous en donnerons simplement les résultats principaux puis nous calculerons l'expression du signal mesuré par l'amplificateur à détection synchrone (PAR 124 A).

1 - DIFFUSION DE LA LUMIERE

Lorsqu'on applique le voltage aux bornes des électrodes, la direction moyenne des molécules subit une rotation d'axe Oy et d'angle $\delta n_x(x,y)$. Cette distorsion induit une modulation du tenseur diélectrique ε_{ij} :

$$\begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} & \varepsilon_{yx} & \varepsilon_{zx} \\ \varepsilon_{xy} & \varepsilon_{yy} & \varepsilon_{zy} \\ \varepsilon_{xz} & \varepsilon_{yz} & \varepsilon_{zz} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & \delta n_x \\ 0 & 1 & 0 \\ -\delta n_x & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \varepsilon_\perp & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_\perp & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{/\!/} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 & -\delta n_x \\ 0 & 1 & 0 \\ \delta n_x & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

Les seules composantes modifiées au premier ordre sont ε_{xz} et ε_{zx} :

$$\varepsilon_{xz} = \varepsilon_{zx} = (\varepsilon_{/\!/} - \varepsilon_{\perp})\ \delta n_x(q_x,z)\ e^{iq_x x}$$

Un champ électrique dirigé selon Ox induit une polarisation selon Oz proportionnelle à δn_x et vice-versa.

Le calcul de la lumière diffusée dépend donc de la polarisation de la lumière incidente dans le cristal liquide.

La figure II-6 donne une représentation de la géométrie de la diffusion. L'onde lumineuse incidente est caractérisée par un vecteur d'onde $\vec{k}_i$ qui fait un angle β_i avec l'axe Oz (qui représente toujours l'axe optique du smectique au repos). La projection $\vec{k}_u^i$ de ce vecteur fait un angle α_i avec Ox (la perpendiculaire aux doigts des électrodes). On décompose de la même façon le vecteur d'onde de la lumière diffusée $\vec{k}^D$.

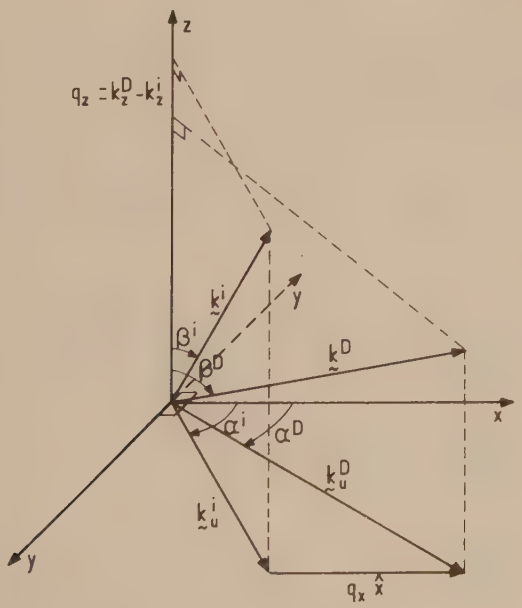


Figure II-6 : Description de la géométrie dans l'échantillon :
$\underset{\sim}{k}^i$ est le vecteur d'onde du faisceau incident, $\underset{\sim}{k}^D$ du faisceau diffusé.
$\vec{q} = q_x\vec{x} + q_z\vec{z}$ est le vecteur d'onde de la composante de Fourier de la distorsion qui induit la diffusion. Pour le premier ordre $q_x = 2\Pi/\lambda_e$ (λ_e est défini fig. II-2).

a - Diffusion d'une onde incidente de polarisation ordinaire

Le champ électrique d'une onde incidente polarisée ordinairement est situé dans le plan xOy et perpendiculaire à $\vec{k}^i$. Il a donc pour vecteur directeur $(-\sin\alpha_i, \cos\alpha_i, 0)$ et sa composante selon Ox induit une polarisation portée par Oz.

L'onde diffusée est alors de polarisation extraordinaire et elle a pour module dans le milieu extérieur à l'échantillon {2} :

$$E^D = \frac{i}{2}\frac{\varepsilon_\perp}{\varepsilon_{//}} \frac{k_o k_u^D \left[1 + \frac{k_z^{o,ext}}{k_z^o}\right]}{\left[k_z^D + \varepsilon_\perp k_z^{D,ext}\right]} \left(\varepsilon_{//} - \varepsilon_\perp\right) \delta n_x\left(q_x, q_z\right) E^o_{ext} \sin\alpha_i$$

où $\vec{k}^o$ est le vecteur d'onde incident dans le vide et $\vec{k}^{o,ext}$ dans le milieu extérieur.
E^o_{ext} est le champ électrique incident dans le milieu extérieur.

b - Diffusion d'une onde incidente de polarisation extraordinaire

Dans ce cas, le champ électrique est dans le plan défini par $\vec{k}_i$ et Oz. Ses composantes selon Ox et Oz sont toutes deux non nulles et elles induisent chacune une polarisation (respectivement P_z et P_x).

L'onde diffusée sera donc la somme de deux composantes, l'une de polarisation ordinaire, et l'autre de polarisation extraordinaire ; elles s'écrivent à l'extérieur de l'échantillon :

- *onde diffusée ordinaire* :

$$E^D = \frac{ik_o}{2} \frac{(k_z^o + \varepsilon_\perp k_z^{o,ext})}{(k_z^D + k_z^{D,ext})} (\varepsilon_{//} - \varepsilon_\perp) \delta n_x(q_x, q_z) E^o_{ext} \frac{\sin\beta_i \sin\alpha_D}{\sqrt{\varepsilon_\perp^2 \sin^2\beta_i + \varepsilon_{//}^2 \cos^2\beta_i}}$$

- *onde diffusée extraordinaire* :

$$E^D = \frac{i}{2} \frac{(k_z^o + \varepsilon_\perp k^{o,ext})}{(k_z^D + \varepsilon_\perp k_z^{D,ext})}$$

$$\frac{[k_z^D \sin\beta_i \cos\alpha_D + k_u^D \cos\beta_i \cos\alpha_i]}{\sqrt{\varepsilon_\perp^2 \sin^2\beta_i + \varepsilon_{//}^2 \cos^2\beta_i}} \quad (\varepsilon_{//} - \varepsilon_\perp)\ \delta n_x\ (q_x, q_z)\ E^o_{ext}$$

Ces expressions montrent que si l'onde incidente de polarisation ordinaire est dirigée dans le plan xOz, l'onde diffusée est nulle ($\sin\alpha_i = 0$). La vérification de cet effet peut constituer un test de l'alignement de l'échantillon. Par contre, si la polarisation incidente est extraordinaire, seule l'onde diffusée de même polarisation est non nulle. Nous avons alors ce qu'on appelle une diffusion polarisée. Toutes nos études en fonction de la température ont été faites dans cette géométrie car elle ne nécessite pas un fort niveau lumineux.

Cependant, pour étudier la dépendance du déplacement des couches en fonction de q_z, nous nous sommes placés dans des conditions de diffusion dépolarisée :

- $\alpha_i = 90°$ (ou 45°)
- polarisation incidente ordinaire
- sélection de la lumière diffusée extraordinaire.

Nous avons choisi cette géométrie car elle permet de travailler avec de plus grands transferts de vecteur d'onde q_z qu'en diffusion polarisée pour les mêmes valeurs de β_i.

2 - DETECTION DE L'ONDE LUMINEUSE

La photocathode du photomultiplicateur est irradiée par l'onde lumineuse diffusée par la distorsion $\delta n_x(q_x)$ du smectique. Mais elle reçoit aussi la lumière diffusée par toutes les imperfections du montage optique quelle que soit leur nature.

Le signal mesuré par le photomultiplicateur est ainsi la somme d'un niveau lumineux continu et de l'onde diffusée proportionnelle à $u(q_z,q_x)$ que nous avons calculée dans la première partie :

$$u(q_z,q_x) = \frac{1}{2}\left[u(q_z,-\omega)e^{-i\omega t} + u(q_z,\omega)e^{i\omega t}\right]$$

$$= \left[u(q_z,\omega) + u(q_z,-\omega)\right]\cos\omega t + i\left[u(q_z,\omega) - u(q_z,-\omega)\right]\sin\omega t$$

$$= A\cos\omega t + B\sin\omega t.$$

L'onde lumineuse continue possède une phase optique $\psi(\vec{r},t)$ que l'on ne connaît pas et qui dépend de la nature de l'objet diffusant. Cependant, l'aire de cohérence de la tache de diffraction est plus large que le diaphragme de 100 µm de diamètre placé devant la photocathode du PM. Aussi nous supposerons que ψ est constante sur cette aire de mesure et nous écrirons l'intensité recueillie par le photomultiplicateur :

$$I = \left| E_o\, e^{-i\psi} + (A\cos\omega t + B\sin\omega t) E_i^D \right|^2$$

Ce signal est envoyé sur un amplificateur à détection synchrone (PAR 124 A) qui le multiplie par une référence sinusoïdale $\cos(\omega t+\theta)$. Un filtre passe-bas isole la partie à fréquence nulle du produit obtenu.

On mesure ainsi, en détection hétérodyne, le terme de fréquence $\omega/2\Pi$:

$$I' = E_o\, E_i^D \left\{ \left[A^* e^{-i\psi} + A\, e^{i\psi} \right] \cos\theta - \sin\theta \left[B^* e^{-i\psi} + B\, e^{i\psi} \right] \right\}$$

L'amplitude du signal mesuré est directement proportionnelle à :

$$\alpha(q,\omega) = \left[(A^* e^{-i\psi} + A\, e^{i\psi})^2 + (B^* e^{-i\psi} + B\, e^{i\psi})^2 \right]^{1/2}$$

Nous avons comparé la dépendance en fréquence de cette expression avec celle de $u(q_z,-\omega)$ que nous avions étudiée pour différentes valeurs des paramètres $\tilde{B}$, η_u et q_z. Nous avions montré qu'elle était composée de trois résonances successives correspondant à $|q_1^+| \sim n\Pi/D$.

Le signal mesuré a une allure générale sensiblement différente. Par exemple pour $q_z = \Pi/D$ la troisième résonance est inobservable et la valeur de ψ modifie la forme des deux autres. Pour $\psi = 0$ ou Π, seule subsiste celle correspondant à $|q_1^+| = 2\Pi/D$. Pour $\psi = \Pi/2$ elle est totalement cachée et la courbe présente une seule résonance pour : $|q_1^+| \sim \Pi/D$ (figures II-7a et b). Pour les autres valeurs de la phase, les deux modes sont visibles mais le plus amorti est légèrement déplacé vers les basses fréquences. Nous pouvons aussi remarquer que la grandeur du signal mesuré à basse fréquence dépend fortement des valeurs respectives de q_z et de ψ.

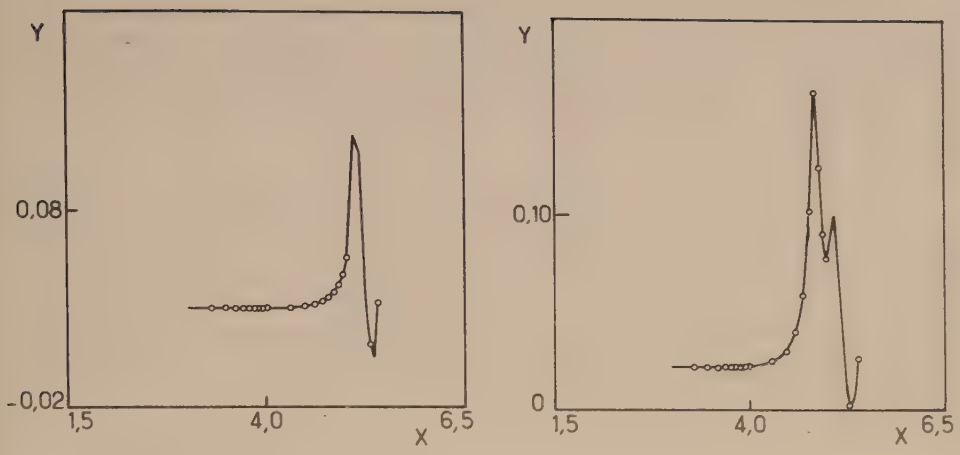


Figure II-7a : Variation théorique de $\alpha(q_z,\nu)$ en fonction du logarithme de la fréquence appliquée aux électrodes pour les valeurs suivantes des paramètres :

$B = 0.5\ 10^8$ ucgs $\quad$ $\eta_u = 0.3$ poises

$q_z = 62.8\ cm^{-1}$ $\quad$ $\psi = 0$

et :

$B = 0.5\ 10^8$ ucgs $\quad$ $\eta_u = 0.3$ poises

$q_z = 62.8\ cm^{-1}$ $\quad$ $\psi = \Pi/4$.

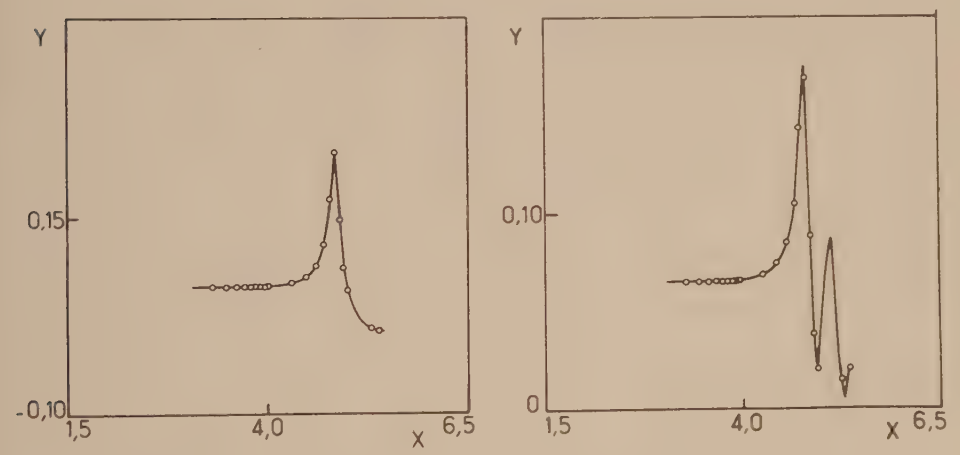


Figure II-7b : Variation théorique de $\alpha(q_z,\nu)$ en fonction du logarithme décimal de la fréquence appliquée aux électrodes pour les valeurs suivantes des paramètres :

$B = 0.5\ 10^8$ ucgs $\quad$ $\eta = 0.3$ poises

$q_z = 62.8\ cm^{-1}$ $\quad$ $\psi = \Pi/2$

et :

$B = 0.5\ 10^8$ ucgs $\quad$ $\eta = 0.3$ poises

$q_z = 62.8\ cm^{-1}$ $\quad$ $\psi = 3\Pi/4$.

Nos mesures expérimentales ont été faites avec un amplificateur à détection synchrone (PAR N° 124) qui possède une bande passante de 2Hz à 250kHz. Dans la gamme de fréquences inférieures à 200kHz, l'erreur de lecture est de 2% de la pleine échelle. Mais elle est toujours inférieure au bruit basse fréquence dont est entachée la mesure (il

peut aller jusqu'à 20% pour certains points obtenus à une température loin de la température de transition nématique-smectique A). Pour les fréquences supérieures à 250kHz, nous avons utilisé un amplificateur à détection synchrone de bande passante : 100 kHz à 50 MHz (PAR 5202).

Nous avons maintenant tous les éléments nécessaires à l'interprétation des résultats expérimentaux. Le calcul de la déformation induite dans le smectique par le couplage flexoélectrique a permis de prévoir la forme du signal que nous détections. Nous pouvons donc analyser les mesures que nous avons faites à différentes températures et à différents transferts du vecteur d'onde q_z.

Bibliographie

1 - PROST et PERSHAN, Flexoelectricity in L.C., *J. Appl. Phys.* 47 *(1976) 2298.*

2 - MARCEROU, *Thèse (1978).*

3 - F.J. KAHN, *Appl. Phys. Lett.* 22, *386 (1973).*

4 - Régulation de température de l'ATNE.

Chapitre III

PRESENTATION
DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

Dans la première partie de ce mémoire, nous avons introduit les caractéristiques de l'hydrodynamique de la phase smectique A. Deux propriétés essentielles vont nous permettre de caractériser le mode de second son :

- d'une part, l'anisotropie extrême de sa relation de dispersion : sa vitesse de propagation tend vers zéro lorsque le vecteur d'onde de propagation tend vers des directions, soit parallèles, soit perpendiculaires, à l'axe optique. (Notons que seule la première géométrie ($q_z >> q_x$) avait préalablement donné lieu à une vérification expérimentale et ce, en dehors du régime hydrodynamique). Nous présenterons tout d'abord nos résultats expérimentaux concernant le cas où la direction de propagation est pratiquement parallèle aux couches. Ceci constitue la première vérification expérimentale de cette annulation caractéristique.

- d'autre part la vitesse de ce mode de propagation est proportionnelle à la racine carrée de la constante de compression des couches $\tilde{B}$ qui, d'après les théories des transitions de phase, doit s'annuler en phase nématique. Nous avons ainsi mesuré, à différentes valeurs de la température, la réponse du smectique dont le paramétrage donne la valeur de $\tilde{B}$. L'analyse de ces résultats fait l'objet du deuxième chapitre.

Le troisième est consacré à une partie de la fonction de réponse du smectique que l'hydrodynamique ne peut pas analyser : le domaine des basses fréquences. PROST et PERSHAN {[1]} ont montré qu'une explication possible réside dans l'influence des défauts toujours présents dans les échantillons de cristal liquide. Nous donnerons les quelques résultats que nous avons obtenus sans prétendre en faire une analyse approfondie.

I - DEPENDANCE DE LA FREQUENCE DE RESONANCE EN FONCTION DU VECTEUR D'ONDE DE DIFFUSION

La forte anisotropie de la célérité du second son a été mise en évidence par diffusion Brillouin {[2]} pour un angle Ψ entre le vecteur d'onde et la normale aux couches inférieur à 45°. Un élargissement non expliqué de la raie correspondant au second son a rendu impossible l'étude du cas où $\Psi > 45°$. Par contre, nos conditions expérimentales se prêtent bien à la mesure de la célérité (ou de la fréquence de résonance puisque $\omega = vq$) lorsque q_z est inférieur à q_x.

Dans ce paragraphe, nous calculerons la dépendance de la fréquence de résonance en $n\Pi/D \sim q_z$ lorsque l'on peut négliger l'amortissement dû à la viscosité, et nous mettrons en évidence son anisotropie.

L'étude de $u(q,\omega)$ montre que la section efficace de diffusion de la lumière peut comporter plusieurs résonances (figure II-7 ou figure III-1a) correspondant sensiblement à $q_1^+ = n\Pi/D$ (où D est l'épaisseur et n dépend du vecteur d'onde q_z). Il arrive cependant que pour certaines valeurs respectives du vecteur d'onde q_z et de la phase de l'oscillateur local ϕ les dernières résonances soient légè-

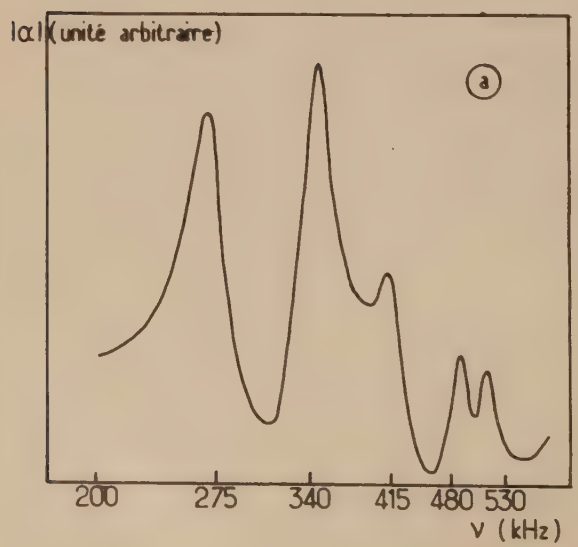


Figure III-1a : Réponse théorique du smectique pour les valeurs des paramètres suivants :
$q_u = 0.4$ *poises* $\tilde{B} = 10^8$ *ucgs*
$q_z = 210\ cm^{-1}$.

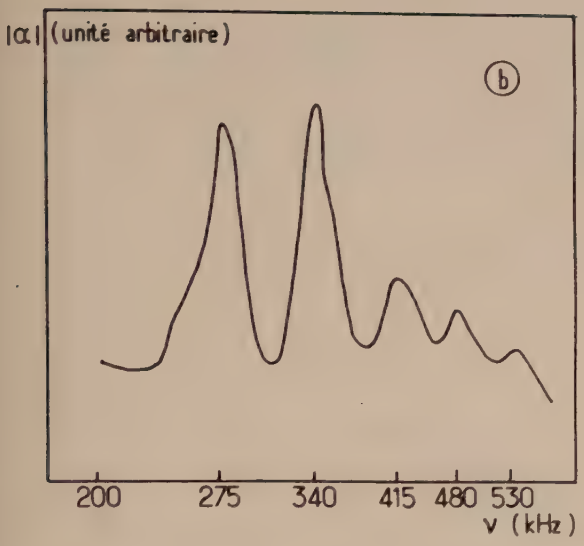


Figure III-1b : Mesure expérimentale de la réponse smectique sur 8OCB : $T_c - T = 5°C$; $q_z = 210\ cm^{-1}$.

rement déplacées vers les fréquences les plus basses (figure II-7). Néanmoins la position des maxima de la réponse du smectique donne une assez bonne approximation de la fréquence de résonance du second son.

Pour expliciter sa dépendance en $n\Pi/D$, on peut vérifier que pour des fréquences inférieures au mégahertz, et pour une valeur typique de la constante de compression des couches $\tilde{B} \sim 10^8$ ucgs, l'expression de q_1^+ se simplifie à :

$$q_1^{+2} = \frac{\rho\omega^2 + j\omega\eta_u q_x^2}{\tilde{B}\, q_x^2}\, q_x^2$$

Si l'on donne à la viscosité un ordre de grandeur de 0.3 poises, pour des fréquences bien supérieures à 20kHz, la partie imaginaire de q_1^{+2} est négligeable. On en déduit alors l'expression des pulsations des résonances correspondant à $|q_1^+| = n\Pi/D$:

$$\omega_n = \frac{1}{\sqrt{\rho}} \left(\frac{n\Pi}{Dq_x}\right) \frac{\sqrt{Bq_x^2}}{\sqrt{1 + \frac{n^2\Pi^2}{D^2 q_x^2}}} \qquad [1]$$

Elle s'annule avec n. Nous avons mis en évidence cette propriété sur deux échantillons de cristal liquide.

- Sur un premier échantillon de 8OCB, possédant une épaisseur de 830 µm et stabilisé à une température inférieure de 0,14°K à la température de transition N-S_A, nous avons mesuré la réponse smectique à différentes valeurs de

q_z (proches de Π/D, $2\Pi/D$, $4\Pi/D$ et $6\Pi/D$). La figure III-2a donne une représentation de la dépendance q_z des fréquences de résonance. Malgré une définition médiocre des positions des maxima due à une qualité passable de l'échantillon étudié dans ce cas, les points expérimentaux se placent bien sur la courbe théorique correspondant à l'équation [1] en trait plein.

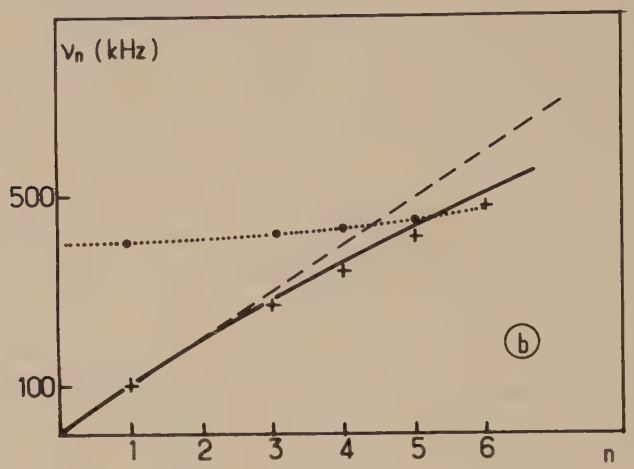


Figure III-2a : Fréquence de résonance en fonction de $q_z = n\Pi/D$ sur le 8OCB à $T_C - T = 0.14°C$.

——— *théorie hydrodynamique*
--- *loi linéaire simple.*

- Lors de la deuxième mise en évidence de ce phénomène, nous avons mesuré la section efficace de diffusion de la lumière sur un échantillon de 8OCB possédant une épaisseur plus faible (550 µm) et stabilisé à 5°C en dessous de la température de transition. La valeur de q_z se situant entre $3\Pi/D$ et $4\Pi/D$, nous avons obtenu, comme on peut le prévoir théoriquement (figure III-1a), plusieurs résonances successives correspondant à :

$$|q_1^+| \sim \frac{3\Pi}{D} , \frac{4\Pi}{D} , \frac{5\Pi}{D} \text{ etc...}$$

Par ailleurs, nous avons mesuré la fréquence de résonance pour $q_z \sim \Pi/D$. La figure III-2b donne une représentation de ω_n en fonction de n. Le faible décalage systématique qui existe entre la valeur des fréquences théoriques et mesurées peut peut-être s'expliquer par la présence d'une flèche entre les deux lames de l'échantillon ou par l'existence de la couche limite de viscosité qui n'est plus négligeable pour les plus hautes fréquences.

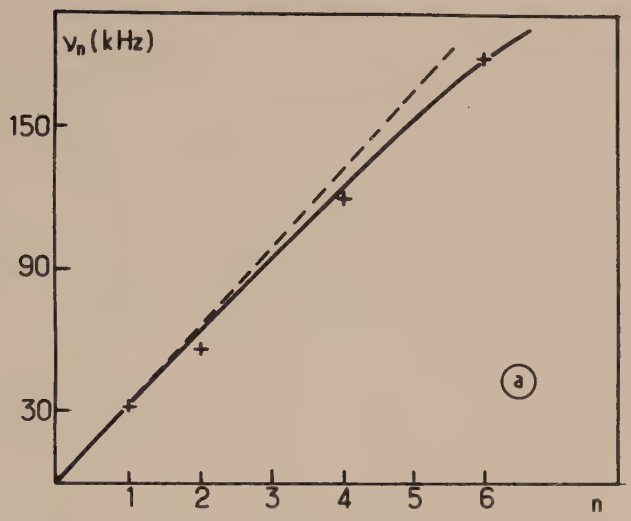


Figure III-2b : Position des maxima respectifs de la réponse du smectique sur le 8OCB à T_c - T = 5°C.

——— *théorie hydrodynamique des smectiques A*
--- *loi linéaire*
-.- *loi de propagation isotrope ajustée sur le point correspondant à n = 6.*

Néanmoins, dans les deux séries d'expérience, l'extrapolation $\omega_n \to 0$ quand $n \to 0$ est très claire et nous avons été en mesure de mettre en évidence pour la première fois la propagation du second son pour des angles Ψ variant de 85° à 57,5°. Nous avons ainsi une excellente signature de ce mode de cisaillement que nous voulions étudier.

Il nous est maintenant possible d'analyser la dépendance thermique de sa vitesse de propagation, proportionnelle à la racine de la constante de compression des couches $\vec{B}$.

II - COMPORTEMENT DE LA CONSTANTE DE COMPRESSION DES COUCHES A LA TRANSITION N-S_A

Les travaux expérimentaux d'enthalpie différentielle {[3,4,5]} effectués sur des séries de composés mésomorphes indiquent que les transitions nématique-smectique A du premier ordre s'accompagnent d'une chaleur latente plutôt faible. C'est pourquoi, à la suite de DE GENNES {[6]}, on applique à ce changement de phase les formalismes décrivant les transitions de phase du second ordre. Elles sont habituellement caractérisées par d'importants effets prétransitionnels qui se manifestent par la variation de différentes grandeurs en loi de puissance en fonction de l'écart à la température de transition $\Delta T = T_c - T$. A chacune de ces grandeurs est ainsi associé un exposant critique {[7]}.

L'un des premiers modèles cherchant à comprendre ces phénomènes a été introduit par LANDAU {[8]} qui remarqua que le passage d'une phase à une autre lors d'une transition du second ordre s'accompagnait d'un changement de symétrie, auquel il a associé la notion de paramètre d'ordre. Il a ainsi pu prévoir certains exposants dits "classiques".

Par ailleurs, les calculs théoriques de certains phénomènes simples (modèle d'ISING, etc...) ont montré que les exposants critiques d'une classe de transitions (caractérisée par d la dimension de l'espace et n celle du paramètre d'ordre) vérifient un certain nombre d'égalités appelées lois d'échelle.

Seuls les exposants "classiques" indépendants de la dimension de l'espace violent la plupart du temps la relation de Josephson qui relie l'exposant ν lié au potentiel thermodynamique par l'intermédiaire de d :

$$d\nu = 2 - \alpha$$

La dimension pour laquelle cette égalité est vérifiée est la dimension critique de l'espace d_c. Cette violation est due à une contradiction interne de la théorie de

LANDAU qui néglige la contribution due aux fluctuations dans la chaleur spécifique {9}. Pour $d > d_c$ cette approximation est parfaitement valable et la théorie de LANDAU donne correctement les exposants critiques. Pour $d < d_c$, à l'aide des techniques du groupe de renormalisation, WILSON {10} a calculé les valeurs des exposants critiques non classiques. Elles sont observées à l'intérieur d'une plage de température autour de T_c dont la largeur diminue lorsque la dimensionalité approche d_c. La détermination de d_c et de la largeur de la région critique constitue ce qu'on appelle le critère de GINSBURG. A l'extérieur de cette plage de température, on passe continûment d'un comportement "du groupe de renormalisation" à un comportement classique, ce qu'on appelle un "cross over".

Dans ce chapitre, nous allons retracer rapidement l'analyse faite par DE GENNES {6} de la transition nématique-smectique A ($n = 2$; $d = 3$) dans l'approximation du modèle de LANDAU. Après avoir exposé les estimations du critère de GINSBURG, nous présenterons nos résultats expérimentaux et nous les situerons parmi les valeurs déjà obtenues par d'autres méthodes.

1 - MODELE DE LANDAU DE LA TRANSITION N-S_A

Le point de départ de toute étude "à la LANDAU" d'une transition de phase est la définition d'un paramètre d'ordre possédant la symétrie de la phase la plus ordonnée et nul dans la phase la plus symétrique. Comme la phase smectique A est caractérisée par l'apparition de couches de liquide bidimensionnel, sa densité massique est périodique selon l'axe des z et, de ce fait, peut être développée en série de Fourier :

$$\rho(\vec{r}) = \rho_o + \frac{1}{2} \sum_{n>o} \left(\rho_n \, e^{inq_s(u+z)} + cc \right)$$

où :
- q_s est le vecteur d'onde de modulation de la densité, perpendiculaire aux couches ($q_s = 2\Pi/D$);
- u est le déplacement des couches par rapport à leur position d'équilibre.

A la suite de DE GENNES {6}, on peut choisir comme paramètre d'ordre de la phase smectique A le coefficient de Fourier du premier ordre :

$$\Psi(\vec{r}) = \rho_1 e^{iq_s u} = \Psi_o \, e^{i\psi}$$

C'est un paramètre complexe semblable à ceux qui caractérisent les superfluides ou les supraconducteurs. De ce fait, il existe une forte analogie entre la transition N-S_A et les systèmes superfluides, hélium 4 ou supraconducteurs.

Caractéristique de la phase basse température, ce paramètre d'ordre doit s'annuler continûment à la transition lorsqu'elle est de second ordre. L'hypothèse fondamentale de la théorie de LANDAU est de supposer que l'on puisse développer l'énergie libre de GIBBS en série de Ψ et de ses gradients, ceci jusqu'à l'ordre nécessaire. L'expression des termes en gradients est compliquée par le couplage existant entre les paramètres d'ordre smectique et nématique. Il en résulte que le développement de la densité d'énergie est formellement analogue à celui de LANDAU-GINZBURG pour les supraconducteurs {[6]} :

$$\mathcal{F} = \mathcal{F}_o + \frac{1}{2} A |\Psi|^2 + \frac{1}{4} C |\Psi|^4 + \frac{1}{2} (\vec{\nabla} + iq_s \delta\vec{n}) \Psi^* \frac{1}{\overline{\overline{M}}} (\vec{\nabla} - iq_s \delta\vec{n}) \Psi$$

$$+ \frac{1}{2} \left\{ K_{11} (\text{div } \delta\vec{n})^2 + K_{22} (\vec{n}_o . \vec{\text{rot}}\, \delta\vec{n})^2 + K_{33} ((\vec{n}_o . \vec{\nabla}) \delta\vec{n})^2 \right\}$$

- $q_s = \frac{2\Pi}{D}$ D est l'épaisseur des couches
- $\frac{1}{\overline{\overline{M}}}$ est un tenseur uniaxe dont les valeurs principales sont $1/M_V$ le long de Oz et $1/M_T$ dans les directions perpendiculaires à l'axe.

Cette écriture est obtenue en spécifiant que les termes intervenant dans la densité d'énergie libre ne doivent pas dépendre du choix de l'origine des coordonnées (ce qui élimine en particulier les puissances impaires de Ψ). Les termes ne faisant intervenir que $\delta\vec{n}$ représentent l'énergie libre de FRANK OSEEN {[11]} des cristaux liquides nématiques ($\vec{n}_o$ représente la direction moyenne de l'axe optique du milieu et $\delta\vec{n}$ ses fluctuations). Les termes de couplage entre $\vec{\nabla}\Psi$ et $\delta\vec{n}$ expriment que la direction d'équilibre de l'axe optique coïncide avec la normale aux couches.

$\mathcal{F}$ doit être minimale pour $|\Psi| = 0$ en phase haute température et pour $|\Psi| \neq 0$ en phase basse température. LANDAU pose donc : $A = a(T-T_c^*)$ où $T_c^* = T_c$ pour une transition du second ordre. Pour une transition légèrement du premier ordre T_c^* est la température à laquelle la transition devrait

se produire si son caractère premier ordre ne lui imposait pas une discontinuité du paramètre d'ordre.

Lorsqu'on néglige les termes de couplage, la minimisation de $\mathcal{F}$ par rapport au paramètre d'ordre smectique impose la nullité des gradients et les égalités suivantes :

$$|\Psi| = 0 \quad T > T_c$$

$$|\Psi| = \left(-\frac{A}{C}\right)^{1/2} \text{ pour } T < T_c$$

Le paramètre d'ordre smectique tend vers zéro pour $T \to T_c$ avec un exposant $\beta = 1/2$.

Dans le terme en gradient, on peut reconnaître :

$$\frac{1}{2M_v} \frac{\partial \Psi^*}{\partial z} \frac{\partial \Psi}{\partial z} = q_s^2 \frac{1}{2M_v} \Psi_o^2 \left(\frac{\partial u}{\partial z}\right)^2$$

qui n'est autre que le terme d'élasticité de compression des couches :

$$\frac{1}{2} B \left(\frac{\partial u}{\partial z}\right)^2$$

d'où :

$$B = \frac{q_s^2 \Psi_o^2}{M_v}$$

Selon la théorie de LANDAU, la constante de compression des couches s'annule donc à la transition comme :

$$\Delta T^{2\beta} = (T_c^* - T)^1$$

2 - POINT TRICRITIQUE

Il existe de nombreux systèmes pour lesquels, en faisant varier un paramètre, la pression par exemple, on peut changer l'ordre d'une transition de phase : le point tricritique correspond au cas limite entre une transition du second ordre et une transition du premier ordre. Lorsqu'on néglige, dans une théorie de LANDAU, tous les termes de couplage avec le paramètre d'ordre de la phase haute température ou les termes en gradients, on développe l'énergie libre

sous la forme :

$$\mathcal{F} - \mathcal{F}_o = \frac{1}{2} A |\Psi|^2 + \frac{1}{4} C |\Psi|^4 + \frac{1}{6} D |\Psi|^6 + \ldots$$

Lorsque la transition est du second ordre, la stabilité de l'énergie libre impose que $C(T_c) > 0$; par contre, pour une transition du premier ordre $C < 0$. Le point tricritique correspond donc à :

$$C(T_c) = 0 \qquad \text{et } D(T_c) > 0$$

On doit tenir compte du terme en $|\Psi|^6$ et un raisonnement semblable à celui du paragraphe II-1 conduit à une valeur de $\beta = 1/4$ pour l'exposant critique du paramètre d'ordre.

Par conséquent, la constante de compression des couches se comportera comme :

$$B = B_o \, (T_c - T)^{1/2}$$

3 - LE CRITERE DE GINZBURG. VALIDITE DE LA THEORIE DE LANDAU

- POINT CRITIQUE HABITUEL

La théorie de LANDAU n'est valable que si son développement est justifié, c'est-à-dire si $\langle |\Psi|^2 \rangle$ et $\langle |\Psi|^4 \rangle$ sont petits près du point de transition. Pour estimer ces deux termes, nous suivrons la démarche de DE GENNES qui confère à chaque groupe cybotactique de volume ξ^d (où ξ est la longueur de cohérence) une énergie kT :

$$A \langle |\Psi|^2 \rangle \, \xi^d \sim kT$$

Puisque l'exposant classique de la longueur de cohérence est 1/2, la valeur moyenne du carré du paramètre d'ordre varie comme $(T - T_c)^{d-2/2}$. La dimension de l'espace est $d = 3$ pour la transition N-S_A ; $|\Psi|^2$ prend donc des valeurs aussi petites que l'on veut près du point de transition.

La théorie de LANDAU néglige les fluctuations du terme du quatrième ordre par rapport à celles du terme de second ordre. Sa validité exige donc :

$$\frac{A}{2} \langle |\Psi^2| \rangle \gg \frac{C}{4} \langle |\Psi|^4 \rangle$$

Avec l'approximation $\langle|\Psi^4|\rangle \sim \langle|\Psi|^2\rangle^2$, on obtient le critère de GINZBURG {12} :

$$1 >> \frac{C\langle|\Psi|^2\rangle}{A} \sim \left(T - T_c\right)^{\frac{d-4}{2}}$$

Il est clair que pour $d < 4$ cette condition ne peut pas être satisfaite si l'on s'approche suffisamment près de T_c.

Nous retrouvons ainsi que la dimension critique, au-dessus de laquelle la théorie de LANDAU est toujours valable, est $d_c = 4$. Pour $d < 4$ il existe une région proche de T_c où l'on ne peut plus négliger les fluctuations du paramètre d'ordre sur des distances comparables à la longueur de cohérence, et à l'intérieur de laquelle on doit mesurer les exposants non classiques. En appliquant son critère à la transition N-S_A M. DELAYE {13} prévoit plutôt un comportement du groupe de renormalisation.

Il existe un argument fondamental en faveur de ce résultat. La théorie de LANDAU n'est plus valable lorsque les fluctuations du paramètre d'ordre deviennent trop grandes. Or, on sait que ces fluctuations diminuent lorsque la portée des interactions intervenant dans le système augmente {12}. Dans un smectique A, leur portée est très faible (de quelques Å) et la largeur de la région critique doit être importante {6}.

Notons que l'exposant non classique de la constante de compression des couches B est $\nu = 0{,}66$ {6}.

- POINT TRICRITIQUE

Lorsque le système se trouve proche d'un point tricritique, le développement :

$$\mathcal{F} = \mathcal{F}_o + \frac{1}{2}A|\Psi|^2 + \frac{1}{6}D|\Psi|^6$$

n'est valable que lorsque les fluctuations de $|\Psi|^6$ sont négligeables :

$$D\langle|\Psi|^6\rangle << \langle|\Psi|^2\rangle A$$

Une évaluation de ces deux termes semblable à celle du paragraphe précédent {9}, conduit à :

$$\frac{D\langle|\Psi|^6\rangle}{A\langle|\Psi|^2\rangle} \sim \frac{D(\langle|\Psi|^2\rangle)^2}{A} \sim \left(T_c^* - T\right)^{d-3}$$

La dimension critique de l'espace est $d_c = 3$. Les exposants classiques sont valables à des corrections logarithmiques près.

4 - ANALYSE DE NOS RESULTATS EXPERIMENTAUX

Lorsqu'on mesure la réponse en fréquence du smectique par la méthode des électrodes interdigitales, on obtient une courbe dont l'allure générale est visualisée sur la figure III-3. Elle diffère de ce que l'hydrodynamique peut prévoir (figure II-7 par exemple) par un mode basse fréquence qu'on analysera plus en détail dans le troisième chapitre, et qu'on explique par l'existence de défauts dans l'échantillon.

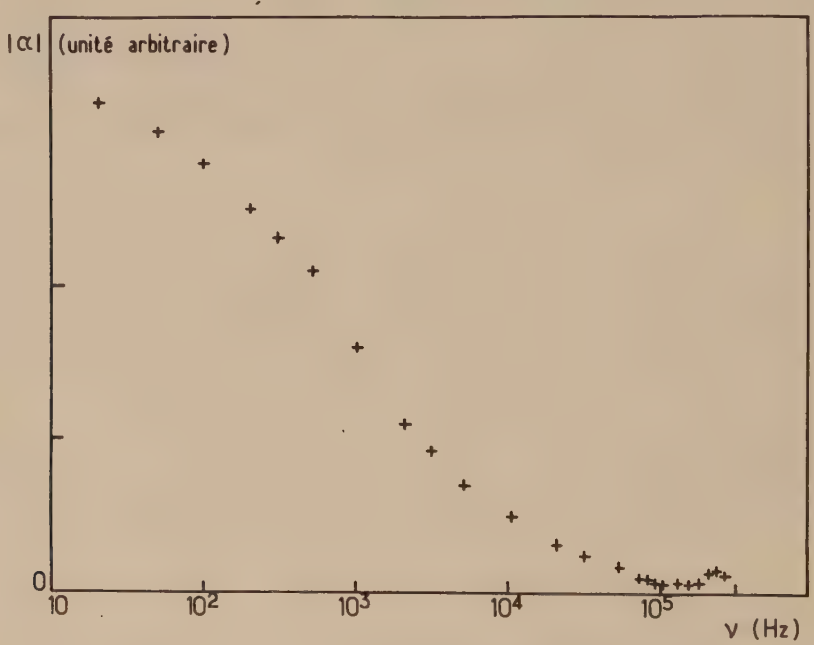


Figure III-3 : Signal hétérodyne dans le 8CB à T_c - T = 3.88°C.

Si l'on fait abstraction de ce mode, on peut paramétrer la partie "haute fréquence" selon l'expression générale de $\alpha(q,\omega)$ calculée dans la seconde partie de la thèse (puisque nos conditions expérimentales se plaçaient loin de la résonance du premier son, nous avons supposé que le couplage entre le déplacement des couches et la dilatation était faible : nous avons donc paramétré avec la limite $\alpha(q,\omega)$quand $A \to \infty$). Le résultat de ce paramétrage donne les valeurs de la constante de compression des couches et d'une viscosité divisées par la densité :

$$\frac{\tilde{B}}{\rho} \qquad \frac{\eta_u}{\rho} = \frac{1}{2\rho}\left(\alpha_4 + \bar{\alpha}_{56}\right)$$

La densité du smectique ne diverge pas à la transition. Les théories de la transition N-S_A prévoient pour B et η_u le comportement prétransitionnel suivant.

$$B = B_o\,(T_c^* - T)^x \quad \text{et} \quad \eta = \eta_o + \lambda\left(T_c^* - T\right)^y$$

avec :

$x = 1$	$y = 0$	en théorie de LANDAU
$x = 0.66$	$y \ll 1$	en théorie du groupe de renormalisation
$x = 0.5$	$y = 0$	pour un point tricritique

Nous avons donc mesuré la réponse du smectique à différentes températures sur deux composés de cristal liquide. Nous avons choisi deux composés réputés pour leur stabilité :

- le 8CB (octylcyanobiphényl)

de formule :

présentant le thermotropisme suivant :(K = cristal, S_A phase smectique A, N nématique, I phase isotrope).

$$K \underset{20.5°C}{\longleftrightarrow} S_A \underset{33.8°C}{\longleftrightarrow} N \underset{40.1°C}{\longleftrightarrow} I$$

- le 8OCB (octyloxycyanobiphényl)

de formule :

présentant les phases suivantes :

$$K \underset{54.5°C}{\longleftrightarrow} S_A \underset{67°C}{\longleftrightarrow} N \underset{80°C}{\longleftrightarrow} I$$

- *ETUDE DU 8CB*

Nos premières expériences ont été réalisées sur un échantillon de 8CB maintenu sous atmosphère d'argon dans les conditions expérimentales suivantes :

- *précision de la régulation en température 0.01°C*
- *diffusion de la lumière polarisée*
- $q_z = 130\ cm^{-1} > \frac{2\Pi}{D}$
- *épaisseur de l'échantillon : D=520 ± 25 µm*

Nous avons constamment vérifié que nous mesurions la réponse du smectique due à la flexoélectricité, en appliquant aux électrodes des voltages inférieurs aux voltages seuils des transitions de FREDERIKS {[14]} : le signal hétérodyne mesuré est alors proportionnel à la tension appliquée aux électrodes.

En outre, nous avons déterminé l'écart de température $T_c - T$ avant chaque série de mesure. Nous avons ainsi vérifié la bonne stabilité chimique du 8CB dont la température de transition a baissé de 0,07°K en un mois. La détermination au centième de degré de cette température peut se faire par l'observation directe de la figure de diffraction : les fluctuations nématiques disparaissent lors du changement de phase.

La réponse hydrodynamique du 8CB est bien distincte du mode basse fréquence et nous avons pu normaliser toutes nos mesures en fonction de la réponse hydrodynamique à basse fréquence $\alpha(q, \omega=o)$, qui correspond à la partie constante de la courbe. Nous n'avions ainsi que deux paramètres à déterminer B/ρ et η_u/ρ.

Le résultat de nos mesures en régime hydrodynamique est visualisé sur la figure III-4 : il constitue la première mise en évidence expérimentale du passage continu d'un mode propagatif (ΔT = 1.00°C) à un mode purement amorti (ΔT=0.02°C) à l'approche de la transition nématique-smectique A.

Le paramétrage de ces mesures nous a permis de préciser la dépendance thermique de la constante de compression des couches sur une plage de température allant de 0,02°C à 4°C au-dessus de la température de transition (nous avons utilisé les mesures de la densité ρ de la référence {[15]}).

Le résultat de ce paramétrage est résumé sur le tableau III-1, qui donne les valeurs de $\tilde{B}$ et de η à chaque écart de température ΔT :

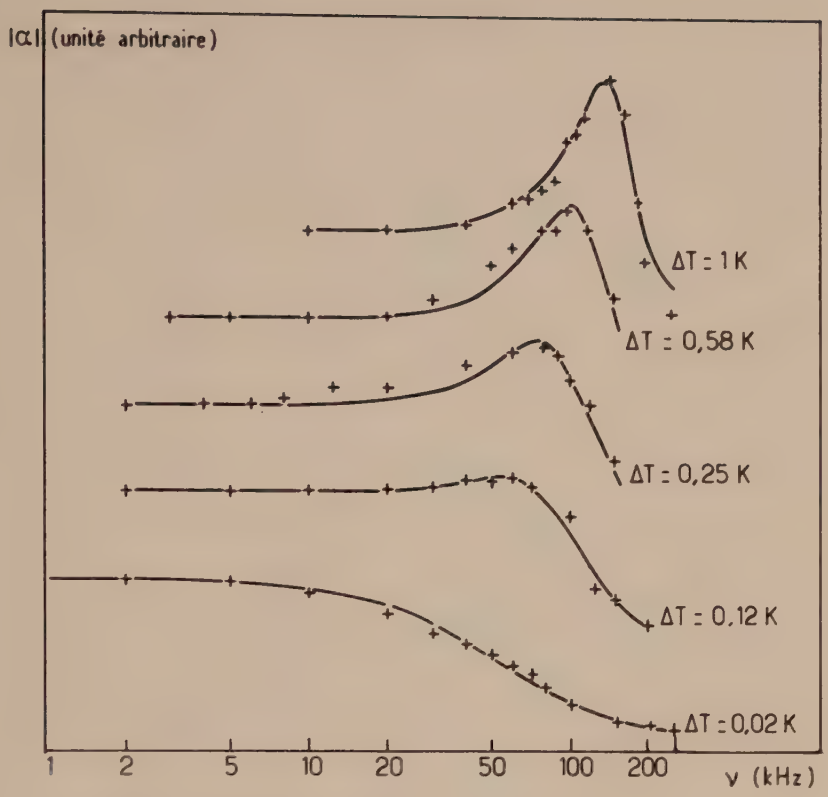


Figure III-4 : Module de la réponse smectique du 8CB en fonction de la fréquence pour différents écarts de températures ΔT.
Les croix correspondent à l'amplitude de la lumière diffusée (résultat expérimental). Les courbes en trait plein représentent le résultat du paramétrage selon l'expression de $\alpha(\omega, q_z)$ ($q_z = 130\ cm^{-1}$).
Pour la clarté du dessin toutes les réponses ont été décalées en ordonnées.

TABLEAU III-1

ΔT	$\tilde{B}$	η_u
0.02°K	$0.56 10^7$ ucgs	1.5 poises
0.12°K	$1.86 10^7$ ucgs	1.5 poises
0.25°K	$2.36 10^7$ ucgs	1.3 poises
0.58°K	$3.70 10^7$ ucgs	1.3 poises
1°K	$6.39 10^7$ ucgs	1.5 poises
4°K	$1.36 10^8$ ucgs	

La réponse du smectique, proportionnelle à $1/\tilde{B}$, diminue lorsque l'on s'éloigne de la transition. La mauvaise précision de nos mesures à $\Delta T = 4°K$ ne permet pas un paramétrage correct. Cependant, à cette température, la réponse est très peu amortie et l'expression [1] donne la valeur de $\tilde{B}$ à partir de la position du maximum que nous pouvons mesurer avec précision.

Les résultats du tableau III-1 permettent de déterminer l'exposant critique qui caractérise la transition N-S_A du 8CB (figure III-5). Nous avons ainsi trouvé que la constante de compression des couches variait comme :

$$B_o \, (T_c^* - T)^x$$

avec :

$$\begin{cases} T_c^* - T_c < 0.01°C \\ x = 0.63 \pm 0.03 \\ B_o = 6.5 \pm 0.1 \, 10^7 \text{ ucgs} \end{cases}$$

La viscosité est constante à la précision de nos paramétrages près :

$$\eta_u = 1.4 \pm 0.1 \text{ poises}$$

Nous trouvons donc que la transition nématique-smectique A du 8CB a un comportement du type "hélium" lorsque le cristal liquide se trouve dans un régime hydrodynamique.

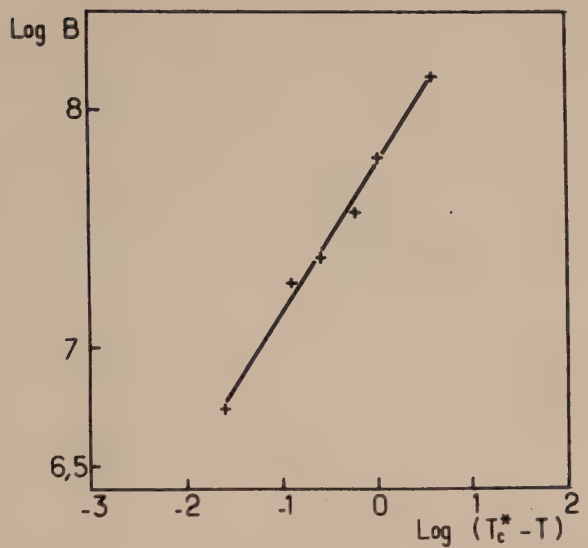


Figure III-5 : Variation thermique de la constante de compression des couches B pour 8CB : le trait continu correspond à une loi en $(T_C^* - T)^x$ avec $x = 0.63$.
$T_C^* - T_C = 0.005°K$ (soit $T_C^* = T_C$ à la précision de notre détermination de la température).

En outre, il est satisfaisant de remarquer que tous ces paramétrages ont pu être faits avec la même valeur de la phase de l'oscillateur local ($\phi \sim 0.45\ \Pi$).

- *ETUDE DU 8OCB*

Lors de notre étude du 8OCB, nous nous sommes placés dans des conditions expérimentales légèrement différentes :

- *précision de la régulation en température: ± 0,001°C*
- *épaisseur de l'échantillon : $D = 540 \pm 10\ \mu m$*
- *diffusion de la lumière polarisée*
- $q_z = 57\ cm^{-1} \simeq \frac{\Pi}{D}$.

Comme pour le 8CB, nous avons constamment vérifié que le signal hétérodyne mesuré était proportionnel au voltage appliqué aux électrodes. Près de la transition N-S_A nous avons diminué la puissance lumineuse pour éviter un échauffement inhomogène de l'échantillon (à cause des électrodes) et pour garder ainsi la précision du millième de degré Kelvin.

La mesure de la température de transition à cette précision n'est pas évidente : sur un échantillon fraîchement préparé il n'y a aucun changement brusque de l'allure de la figure de diffraction. Seule la mesure du signal hétérodyne à basse fréquence nous permet de déterminer T_c : il change de phase à la transition. Notons que l'apparition de la figure de diffusion en "croissant" caractéristique de la phase smectique A ne permet pas la mesure de T_c lors de nos expériences : ce "croissant" n'apparaît que lorsque nos échantillons ont plus d'une semaine et à plus de 0,05°C en dessous de la transition.

Le paramétrage des courbes obtenues à différentes températures a été moins facile que pour l'autre composé ; la réponse smectique présente deux résonances dont la première se situe sur l'aile du mode basse fréquence. Nous n'avons pas ainsi une mesure directe de $\alpha(q,\omega=o)$ que nous avons dû paramétrer.

Le 8OCB possède une faible viscosité (0.3 poises): les résonances du second son sont très étroites et ne peuvent pas être déplacées de manière sensible par la présence de l'aile du mode central. Lorsque la réponse du smectique est résonante, nous pouvons donc la paramétrer sans trop d'erreurs sur la constante de compression des couches dont la valeur commande la position de la résonance.

Par contre, dans le cas d'un comportement amorti, il est impossible de séparer les deux réponses.

Nous n'avons donc pu analyser la variation de la constante de compression des couches que sur une plage de température allant de 0,065°C à 6°C de la transition (figure III-6).

Le tableau III-2 donne la valeur des paramètres trouvés à différents écarts de température $T_c - T$:

TABLEAU III-2

ΔT (°K)	B/ρ (ucgs)	η_u/ρ (ucgs)
0.065	$0.23\ 10^8$	0.4
0.106	$0.25\ 10^8$	0.3
0.212	$0.31\ 10^8$	0.3
0.525	$0.46\ 10^8$	0.3
1.041	$0.59\ 10^8$	0.3
2.039	$0.81\ 10^8$	0.3
3.920	$1.08\ 10^8$	0.3
6.101	$1.39\ 10^8$	0.3

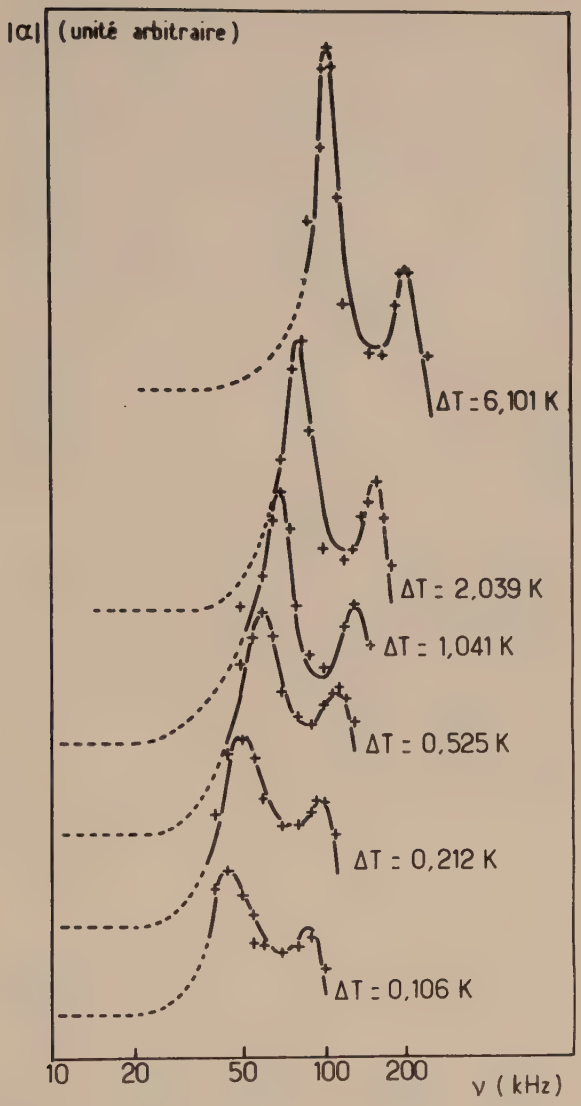


Figure III-6 : Module de la réponse smectique du 8OCB en fonction de la fréquence pour différents écarts de température ΔT.
Les croix correspondent aux mesures expérimentales de la lumière diffusée.
La courbe en trait plein représente le meilleur paramétrage de $|\alpha(\omega, 67\ cm^{-1})|$.
Pour la clarté du dessin les réponses ont été décalées en ordonnées. La courbe en pointillé indique la réponse basse fréquence hydrodynamique.

L'analyse de ces résultats conduit à la dépendance thermique suivante pour B/ρ (figure III-7) :

$$\frac{B}{\rho} = \frac{B_o}{\rho} \quad (T_c^* - T)^x$$

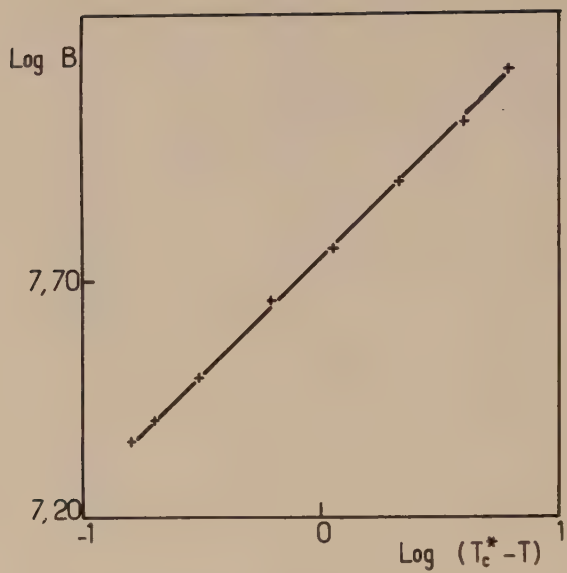


Figure III-7 : Variation de la constante de compression des couches B pour 8OCB : la courbe en trait plein correspond à une loi en $(T_c^* - T)^x$ avec $x = 0.49$.

avec :

$$B_o/\rho = 0.6 \pm 01\ 10^8 \text{ ucgs}$$

$$x = 0.49 \pm 0.03$$

$$T_c^* = T_c + 0.1°C$$

La viscosité est à nouveau constante à la précision de nos paramétrages :

$$\frac{\eta_u}{\rho} = 0.3 \pm 0.05 \text{ ucgs}$$

La valeur de l'exposant critique de la constante de compression des couches semble s'accorder avec un comportement de type tricritique.

L'écart de température $T_c^* - T_c$ que nous avons trouvé est nettement supérieur à celui obtenu par le groupe des cristaux liquides du M I T {[16]} dans des expériences "basses fréquences" que nous exposerons un peu plus loin. Cependant, comme le comportement critique observé est très différent du nôtre une comparaison des températures T_c^* est probablement illusoire.

L'exposant critique de 0.5 peut être déterminé par un paramétrage des réponses mesurées comme nous venons de l'exposer, mais aussi en séparant les deux modes correspondants à $|q_1^+| \sim \Pi/D$ et $|q_1^+| \sim 2\Pi/D$. Le 8OCB ayant une très faible viscosité, les résonances sont très peu amorties pour des écarts de température supérieurs à 0.1°K et l'expression [1] donne directement la valeur de $\tilde{B}$. Cette méthode "manuelle" conduit au même exposant critique de 0.5 pour les deux modes. Cependant le mode basse fréquence est proche et nous ne savons pas analyser l'influence des défauts sur l'exposant de la constante de compression des couches. Bien que les mesures de $\tilde{B}$ soient reproductibles dans le temps, et que les analyses séparées des deux modes de la réponse smectique conduisent au même résultat (elles donnent deux mesures de $\tilde{B}$ à deux fréquences différentes) nous n'avons pas d'argument vraiment convaincant pour exclure une influence subtile des impuretés sur l'exposant critique {[24]}. Très près de la transition ($T_c - T < 0.065$°K) sur la plage de température dans laquelle nous n'avons pas pu isoler la réponse hydrodynamique de celle due aux défauts, nous ne pouvons pas non plus exclure un possible "cross over" vers un autre comportement critique.

Pour terminer l'exposé de ces résultats nous devons noter que, bien que nos travaux sur 8OCB aient été poursuivis dans des conditions expérimentales différentes de ceux sur 8CB, nous avons retrouvé la même valeur de la phase de l'oscillateur local :

$$\phi \sim 0{,}4\ \Pi$$

Rappelons que c'est la discordance entre les prévisions théoriques et les résultats expérimentaux préalables aux nôtres qui a motivé notre étude du second son. Par souci de clarté et pour permettre une discussion plus précise de nos mesures, nous allons présenter les différentes expériences conduisant à la détermination de la constante de compression des couches B.

5 - RESULTATS EXPERIMENTAUX ACTUELS

On peut classer ces expériences en deux catégories selon le domaine de fréquences auxquelles elles se placent :

- *la diffusion BRILLOUIN et la résonance ultrasonore permettent une évaluation de B dans le domaine du GHz (régime non hydrodynamique).*
- *les autres méthodes se placent à des fréquences bien inférieures à la fréquence de résonance du second son et de ce fait donnent la constante isotherme* B_T.

* *DIFFUSION BRILLOUIN*

Nous avons déjà cité les expériences de diffusion BRILLOUIN {[2]} qui ont permis de mettre en évidence la propagation du second son sur le MBMBAC dont la phase smectique est très large. Les mesures des constantes élastiques ont malheureusement été réalisées près de la transition $S_A - S_C$ à plus de 10°C de la température de transition N-S_A. Cependant, la dépendance en température de $\hat{B}$ s'extrapole à 0 près de la transition. Ce résultat n'a pas été retrouvé sur 8CB par BRADBERRY et VAUGHAN {[7]} qui, à l'aide de la même technique, n'ont pas pu mettre en évidence directement la propagation du second son mais ont calculé la constante de compression des couches par un paramétrage de l'anisotropie de la propagation du premier son. Leurs résultats montrent clairement que B tend vers une valeur finie non nulle à la transition nématique-smectique A . Ces mesures, assez surprenantes a priori, s'expliquent {[18]} par le fait qu'à de telles fréquences les variations du directeur $\vec{n}$ et du module du paramètre d'ordre Ψ_o relaxent indépendamment de celles du déplacement u. M. LIU a montré qu'alors, la vitesse du second son gardait la même anisotropie mais qu'elle ne s'annulait pas à la transition. Son ordre de grandeur peut aussi être plus important : il existe effectivement un facteur 50 entre les mesures de BRADBERRY et les nôtres. Il est donc clair que la diffusion BRILLOUIN correspond à des mesures faites dans un régime inadapté à l'étude de cette transition de phase.

* *EXPERIENCES "BASSES FREQUENCES"*

Si l'on impose une dilatation normale aux couches à un monodomaine de smectique, l'intensité lumineuse diffusée augmente en deux points symétriques par rapport au faisceau incident ; ils correspondent à une instabilité de flambement de vecteur d'onde bien défini. La mesure du seuil de cette instabilité donne le module d'élasticité B_T auquel R. RIBOTTA {[19]} a trouvé une dépendance thermique en $(T_c - T)^x$ décrite par un exposant critique de 0.3. Un résultat semblable a été obtenu par CLARK {[20]} sur le même composé (CBOOA ; $x \simeq 0.36$). La mesure de la contrainte transmise par le smectique A conduit au même genre de résultats {[21]}.

En outre, une étude systématique de la transition N-S_A a été entreprise au M I T sur trois cristaux liquides usuels : 8OCB, 8CB et CBOOA. En phase basse température, la mesure de la lumière diffusée en fonction du transfert de vecteur d'onde q_z a permis à LISTER et al. {[16]} de déterminer le rapport B_T/K où K est la constante élastique de gerbe (vecteur d'onde et fréquence d'observation : $q \sim 10^5 cm^{-1}$, $\nu \sim 10^3 Hz$). Sur ces trois composés les auteurs ont retrouvé

le même exposant inexpliqué par la théorie : 0,3 sur CBOOA, 0,3 sur 8OCB et 0,26 sur 8CB.

Par contre, leur détermination du module d'élasticité est beaucoup plus incertaine : il existe un facteur 5 entre les mesures de RIBOTTA et celles de LISTER et al. sur CBOOA.

En outre, BARTOLINO et DURAND {[21]} notent qu'un vieillissement de 15 jours correspond à une diminution de B_T d'un facteur 4 dans leur expérience. La dispersion de ces valeurs est donc vraisemblablement liée à des taux d'impuretés et de défauts différents. Nous avons noté que nos déterminations de B étaient essentiellement indépendantes de tout vieillissement, et on peut donc raisonnablement penser que nos valeurs ne sont pas perturbées par ce genre d'effet.

On peut se demander dans quelle mesure il est possible de comparer les constantes élastiques à température constante et celles à entropie constante ; on montre facilement que (voir annexe II) :

$$\frac{B_T}{B} = \frac{C_{P,\nabla_{zu}}}{C_{p,\phi_z}}$$

- $C_{P,\nabla_{zu}}$: chaleur spécifique prise à pression et déformation constante.
- C_{P,ϕ_z} : chaleur spécifique prise à pression et contrainte constante.

Vu la faiblesse des énergies élastiques, ce rapport est peu différent de un (voir annexe II).

III - REPONSE BASSE FREQUENCE

Dans une étude des défauts smectiques PERSHAN {[22]} a démontré l'analogie entre les lignes de dislocations et les lignes de courant, le champ de contrainte mécanique et le champ magnétique, etc... Il a ainsi introduit l'idée qu'une contrainte exerçait une force sur une ligne de dislocation analogue à la force de LAPLACE et ce phénomène serait responsable de la relaxation de la déformation dans les expériences de flambement. Les impuretés peuvent aussi être considérées {[1]} comme l'équivalent de dipôles ou de monopôles magnétiques : elles donnent naissance à une importante renormalisation des constantes élastiques, en particulier de B qui devient :

$$B^{eff} = \frac{B}{1 + \chi_{33} B}$$

où χ_{33} est une "polarisabilité" des densités de boucles de dislocation.

On peut remarquer que pour une même concentration d'impuretés, plus B est grand, plus il est renormalisé {[23]}.

La présence d'impuretés peut expliquer l'existence du mode basse fréquence que nous observons expérimentalement. L'hydrodynamique prévoit une réponse élastique pure proportionnelle à 1/B. Lorsque la fréquence d'excitation est assez faible pour que les dislocations puissent bouger, elles contribuent à la diffusion de la lumière proportionnelle à $1/B^{eff}$. Plus la fréquence augmente, plus le nombre de dislocations mobiles diminue et la réponse du smectique décroît. Nous avons montré expérimentalement que le taux de renormalisation de la constante de compression des couches dépend à la fois de l'écart en température $T_c - T$ (figure III-8) et du transfert de vecteur d'onde q_z (figure III-9). Cependant, en moyenne B^{eff} à 20 Hz est 25 fois plus faible que la constante élastique du régime hydrodynamique.

Dans l'expérience d'instabilité mentionnée plus haut, si la contrainte extérieure est trop lente, on l'observe

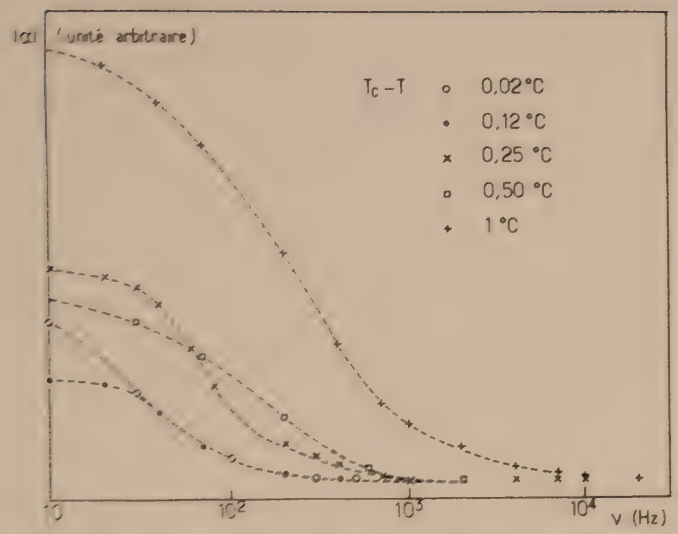


Figure III-8 : Toutes les réponses sont normalisées sur la partie constante.

rien ; en outre, la déformation que l'on voit juste au-dessus du seuil est relaxée en quelques dizaines de secondes par une création de dislocations qui annulent les effets du champ extérieur [18,20]. Cette observation est assez semblable à celle du mode basse fréquence mentionnée ici. Elle diffère cependant en ce que l'instabilité de flambement est un phénomène non linéaire apparaissant pour un déplacement u supérieur à l'épaisseur d'une couche. Dans ce domaine de déformation l'hydrodynamique n'a certainement aucune raison d'être valide, alors que dans notre cas elle devrait l'être.

L'expression de E^{eff} est obtenue par un calcul statique basé sur l'hypothèse qu'à l'équilibre, la densité de moment des dislocations P est proportionnelle à la contrainte macroscopique ϕ, soit :

$$P_3 = \chi_{33}\, \phi_3$$

χ_{33} est une polarisabilité des densités de boucles de dislocation.

Si l'on suppose que la densité de dislocations est constante sur tout le volume de l'échantillon, la dépendance en fréquence de la constante renormalisée se déduit immédiatement ; soit τ le temps de relaxation de P_3 :

$$\tau \frac{\partial P_3}{\partial t} + P_3 = \chi_{33}\, \phi_3$$

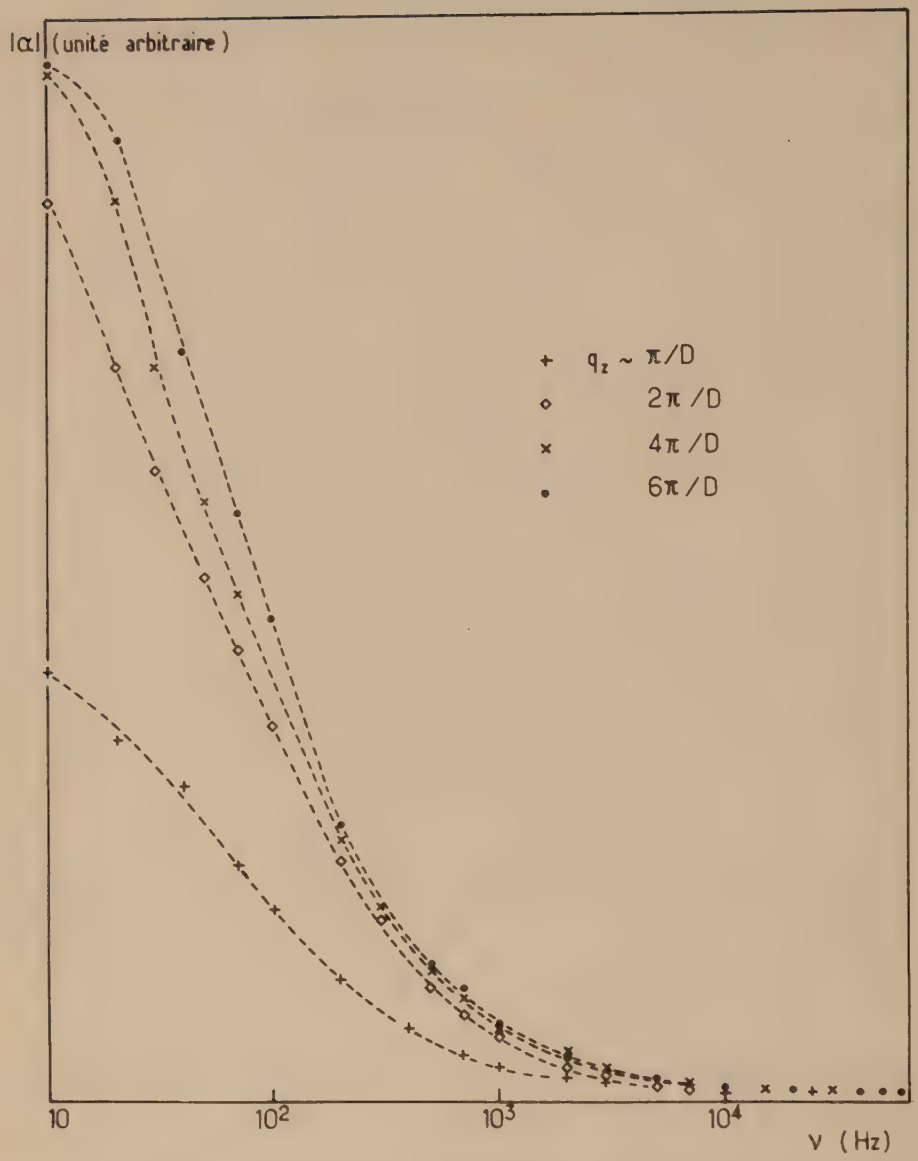


Figure III-9 : Toutes les réponses ont été normalisées sur la partie constante.

soit encore :

$$P_3 = \frac{\chi_{33}}{1 + j\omega\tau}\,\phi_3$$

La dépendance en fréquence de la constante de renormalisation s'écrit :

$$B^{eff}(\omega) = \frac{B}{1 + \frac{aB\chi_{33}}{1 + j\omega\tau}}$$

La fréquence typique à laquelle l'effet de renormalisation disparaît est $\omega_c = X_{33} aB/\tau$ ($\omega_c \tau > 1$). Il est remarquable d'observer que plus on s'éloigne de la température de transition, plus cette fréquence augmente (croissance de B), ce que l'expérience montre aussi (figure III-8). En outre, la dépendance thermique de la fréquence de relaxation du mode basse fréquence pour 8CB (définie comme la fréquence à laquelle la réponse est divisée par deux) semble présenter un crossover entre un exposant de 0.7 loin de T_c et un exposant de 0.3 près de T_c (figure III-10). Nous avons vérifié que, pour un échantillon donné, la valeur de cette fréquence ne variait pas de plus de 10 % en un mois même si B^{eff} dimi-

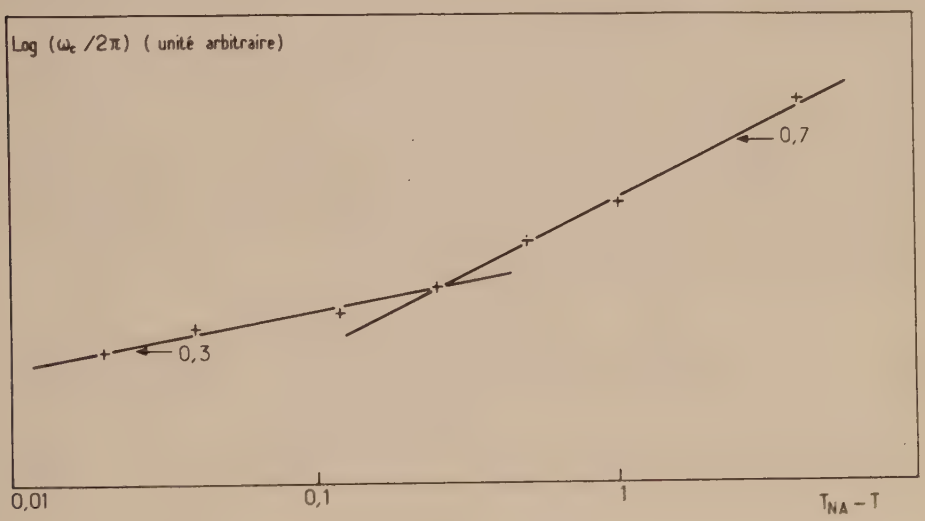


Figure III-10 : Dépendance thermique de la fréquence de relaxation du mode basse fréquence.

nue légèrement en dessous de 100 Hz lorsque l'échantillon vieillit. Cependant, nous restons extrêmement prudents au sujet de l'existence possible de ce "crossover". En effet, cette expérience n'a pu être effectuée que sur le seul 8CB et sur un seul échantillon. Dans le cas du 8OCB, la mauvaise qualité du rapport signal sur bruit à basse fréquence (compte tenu des faibles voltages nécessaires pour se mettre à l'abri d'effets non linéaires) ne nous a pas permis de conduire une expérience semblable sur toute la gamme de température.

Cependant sur ce même composé, nous avons comparé les réponses du smectique basse fréquence obtenues à différents vecteurs d'ondes q_z et à la même température(ΔT=0.14°C) (figure III-9). La constante de compression des couches est d'autant plus renormalisée que le vecteur d'onde q_z est grand; par contre, la fréquence à mi-hauteur est constante à la précision de nos expériences.

La concordance entre l'expression de la constante renormalisée $B^{eff}(\omega)$ et le mode basse fréquence n'est que qualitative, ce qui n'est guère surprenant : l'obtention de cette formule repose sur l'hypothèse d'une répartition homogène des défauts. Or PERSHAN {[19]} a démontré qu'une lame de verre parfaitement plane repousse les défauts dans le volume de l'échantillon. Par contre intuitivement, on peut penser que des surfaces non parfaites sont un siège important de dislocations.

A partir des quelques résultats que nous venons de présenter, il nous est difficile de dire si les densités de boucles de dislocations sont liées à la présence de défauts préexistants, d'impuretés ou sont d'origine thermique (les deux effets sont sans doute coexistants). Seuls les signaux obtenus à des fréquences inférieures à 100 Hz sont peu reproductibles (la hauteur du pic augmente légèrement à mesure que l'échantillon vieillit : importance des impuretés). Il ne nous paraît guère raisonnable d'exclure la possibilité de défauts "thermiques" du type de ceux décrits dans les simulations sur les modèles d'ISING {[24]} et responsables de la transition d'après HELFRICH {[25]}.

Lors de notre étude du second son, nous avons essayé de nous placer dans les meilleures conditions expérimentales : en particulier nous avons fabriqué des échantillons d'épaisseur assez importante (500 µm) pour mesurer un bon signal haute fréquence. Ces conditions ne sont pas idéales pour l'étude du mode basse fréquence qui semble gouverné par l'existence de défauts. Aussi, nous considérons que les quelques résultats exposés dans le dernier chapitre ne devraient être que le point de départ d'une analyse plus approfondie des boucles de dislocations dont l'importance ne paraît pas négligeable à la transition nématique-smectique A.

Bibliographie

1 - PERSHAN P.S., PROST J., *J. Appl. Phys. 46, 2343 (1975).*

2 - LIAO Y., CLARK N.A., PERSHAN P.S., *Phys. Rev. Lett. 30, 639 (1973).*

3 - ARNOLD H., *Z. Physik. Chem., Leipzig, 239, p. 283 (1968); 240, p. 185 (1969).*

4 - DAVIS G.J., PORTER R.S., *Mol. Cryst. Liq. Cryst. 10, p. 1 (1970).*

5 - HARDOUIN F., *Thèse de Docteur-Ingénieur.*

6 - DE GENNES P.G., *Sol. State Comm. 10, 753 (1972).*
DE GENNES P.G., *Mol. Cryst. Liq. Cryst. 38A, 49 (1973).*

7 - BOCCARA N., *"Symétrie, Théorie des transitions avec paramètre d'ordre" Hermann (1967).*
STANLEY H.E., *"Introduction to phase transitions and critical phenomena", Clarendon Press Oxford.*

8 - LANDAU L., LIFCHITZ E., *"Physique statistique" Edit. MIR.*

9 - TOULOUSE G., PFEUTY P., *"Introduction au groupe de renormalisation et à ses applications", P.U.G. (1975).*

10 - WILSON K.G., KOGUT J., *Phys. Rept 126, 75 (1974).*

11 - OSEEN C.N., *Trans. Faraday Soc. 29, 883 (1933).*
FRANK F.C., *Discuss. Faraday Soc. 25, 19 (1958).*

12 - KADANOFF L., GOTZ W., HAMBLEN D., HECHT R., LEWOS E.A.S., PALCIANSKAS V.V., RAYL M., SWIFT J., ASPONES D., KANE J., *Reviews of Mod. Phys. 39, 395 (1967).*

GINZBURG V.L., *Fiz. Tverd. Tela 2, 2031 (1960).*
GINZBURG V.L., *Soviet. Phys. Solid State 2, 1824 (1960).*

13 - DELAYE M., *Thèse de Doctorat d'Etat (1978).*

14 - DE GENNES P.G., *The Physics of Liquid Crystals", Clarendon, Oxford (1974).*

15 - LEADBETTER , *Mol. Cryst. Liq. Cryst. (Letters)* 44, 231 (1977).

16 - LISTER D., NIELSEN A., BIRGENEAU , DANA , DAVIDOV , GARCIA-GOLDING , KAPLAN , SAFINYA , SCHAETTING . *Journal de Phys.* 40, C3-339 (1979).

17 - BRADBERRY G.W., VAUGHAN J.M., *Physics Letters* 61A, 225 (1977).

18 - LIU M., *Physical Review A*, 19, 2380 (1979).

19 - RIBOTTA R., *C.R. Hebd. Seanc. Acad. Sci.*, 278B, 23c (1974).

20 - CLARK N.A., *Phys. Rev.*, A14, 1551 (1976).

21 - BARTOLINO R., DURAND G., *Phys. Rev. Lett.* 38, 1640 (1977).

22 - PERSHAN P.S., *J. Appl. Phys.* 45, 1592 (1974).

23 - GASPAROUX H., PROST J., *Ann. Rev. of Phys. Chem.* 27, 175 (1976).

24 - PERSHAN P.S., PROST J., *J. de Physique Lettre* 40, L 27 (1979).

25 - SCHNEIDER T., STALL E., *Phys. Rev.* B18, 6468 (1978).

26 - HELFRICH W., *J. de Physique* 39, n° 11, 1199 (1978).

Conclusion Générale

La technique des électrodes interdigitales nous a donc permis d'étudier la réponse en fréquence des smectiques A dans un domaine de vecteur d'onde de quelques centaines de centimètres moins un. Nous avons ainsi montré sur deux composés bicouches (8CB et 8OCB) que le domaine de validité des théories hydrodynamiques est en fait très limité:

- *vers les basses fréquences :* un mode non hydrodynamique, vraisemblablement lié à la présence de défauts, donne une constante élastique apparente environ vingt fois plus petite que la constante non renormalisée.

- *vers les hautes fréquences :* dès que celles-ci excèdent l'inverse du temps de vie des fluctuations du paramètre d'ordre, ou du directeur, les lois de dispersion prévues par l'hydrodynamique ne sont plus valables. La comparaison de nos résultats expérimentaux avec ceux obtenus en diffusion BRILLOUIN suggère qu'un important phénomène de relaxation a lieu entre 1 et 100MHz. Ceci implique que les deux observations du second son préalables aux nôtres ne concernaient probablement pas le mode de cisaillement prévu par l'hydrodynamique.

Malgré cette plage restreinte de validité des théories hydrodynamiques, il nous a été possible de choisir des paramètres expérimentaux tels que nous avons pu mettre en évidence pour la première fois la propagation du second son dans des directions légèrement inclinées par rapport aux couches smectiques ($\psi > 45°$) et dans une plage où l'hydrodynamique est correcte. Nous avons aussi été en mesure de montrer expérimentalement son extrême anisotropie. Les valeurs de la constante élastique de compression des couches que nous avons déduites de cette étude, ne dépendent pas du vieillissement de l'échantillon montrant la validité de la

technique pour la mesure de B.

De plus nos résultats concernant le comportement critique de cette grandeur à l'approche de la transition smectique A -nématique sont les seuls compatibles avec les théories existant à l'heure actuelle. Pour les deux composés étudiés, nous pouvons exclure très clairement un comportement de type classique. La dépendance thermique de $\tilde{B}$ dans le cas du 8CB correspond à un comportement de type "hélium" tel que l'avait prévu DE GENNES.

Les résultats obtenus sur le 8OCB suggèrent par contre que la transition N-S_A de ce composé se trouve près d'un point tricritique.

Enfin, notre étude suggère un certain nombre de développements :

- nous pensons qu'une explication des résultats "basses fréquences" reste à être trouvée tant au plan théorique qu'au plan expérimental.

- l'existence d'un très fort phénomène de relaxation entre 1 MHz et 100 MHz mérite une étude approfondie.

- la technique que nous avons adaptée aux smectiques A semble bien appropriée à l'étude de la transition S_A-S_A et au phénomène nématique rentrant.

Annexe I

PROBLEME DE LA COUCHE DE PERMEATION

Nous avons résolu les équations hydrodynamiques correspondant à nos conditions expérimentales en négligeant l'une des conditions aux limites ($v_x = o$).

Le but de cette annexe est de montrer l'existence d'une couche limite près des lames à l'intérieur de laquelle il existe un fort gradient de vitesse qui permet d'annuler la vitesse sur la lame. En dehors de cette couche, nous retrouvons l'expression de $u(q,-\omega)$ que nous avons calculée. Pour simplifier la résolution des équations hydrodynamiques, nous supposerons que le smectique est incompressible (ce qui est valable loin de la résonance sonore).

Ainsi les équations du mouvement d'un smectique incompressible et soumis à une excitation en $e^{-i\omega t}$ s'écrivent:

$$\begin{cases} j q_x v_x + \partial_z v_z = 0 \\ v_z + (\lambda_p B \partial_z^2 + j\omega) u = j \lambda_p f q_x \partial_z E_x \\ \rho j \omega v_x = j q_x p - j q_x \alpha_4 \partial_x v_x - \eta_u \partial_z (\partial_x v_z + \partial_z v_x) \\ \rho j \omega v_x = \partial_z p - B \partial_{zz}^2 u + j f q_x \partial_z E_x \\ \qquad - j q_x \eta_u (\partial_x v_z + \partial_z v_x) - \eta_V \partial_{zz}^2 v_z \end{cases}$$

L'élimination successive de la pression, puis des vitesses v_x et v_z nous conduit à une équation différentielle du 6ème degré en fonction du déplacement u :

$$0 = -\frac{\lambda_p B}{q_x^2} \eta_u \frac{\partial^6 u}{\partial_z^6} + \left\{ -\lambda_p B \left(2\eta_u - \eta_V - \alpha_4 + \frac{j\rho\omega}{q_x^2} \right) - j\omega \frac{\eta_u}{q_x^2} \right\} \frac{\partial^4 u}{\partial_z^4}$$

$$+ \left\{ -B - j\omega \left(\eta_u - \eta_V - \alpha_4 + \frac{j\rho\omega}{q_x^2} \right) - \lambda_p B \left(-j\rho\omega + q_x^2 \eta_u \right) \right\} \frac{\partial^2 u}{\partial_z^2} + \left(-\rho\omega^2 - j\omega\eta_u q_x^2 \right) u$$

$$+ \left\{ 1 + \lambda_p \left(-j\rho\omega + q_x^2 \eta_u + (2q_u - \eta_V - \alpha_4 + \frac{j\rho\omega}{q_x^2}) \frac{\partial^2}{\partial_z^2} + \frac{\eta_u}{q_x^2} \frac{\partial^4}{\partial_z^4} \right) \right\} j f q_x \partial_z E_x$$

Lorsque l'on néglige la perméation ($\lambda_p = o$), on retrouve l'équation différentielle que doit vérifier le déplacement et dans laquelle on a posé $C = 0$ et $A \to \infty$ puisque l'on néglige la propagation sonore.

$$0 = -j\omega \frac{\eta_u}{q_x} \frac{\partial^4 u}{\partial^4 z} + \left\{ -B - j\omega(\eta_u - \eta_v - \alpha_4 + j \frac{\rho\omega}{q_x^2}) \right\} \frac{\partial^2 u}{\partial^2 z}$$

$$- (\rho\omega^2 - j\omega\eta_u q_x^2)u + j f q_x \partial_z E_x$$

La résolution de l'équation sans second membre fait intervenir les quatre vecteurs d'ondes :

$$\begin{cases} \pm q_1 = \pm i\, q_1^+ \\ \pm q_2 = \pm i\, q_1^- \end{cases}$$

La solution générale est la somme de la solution forcée et de la solution de l'équation sans second membre. Nous pouvons l'écrire en toute généralité de la manière suivante :

$$u = u_1^+ e^{q_1 z} + u_1^- e^{-q_1 z} + u_2^+ e^{q_2 z} + u_2^- e^{-q_2 z} + \frac{jf}{\rho} q_x \frac{\partial_z E_x}{\omega_o^2 + \omega_1^2 \frac{K^2}{q_x^2} j\omega_2^2 \frac{K^4}{q_x^4}}$$

Les fréquences ω_o, ω_1 et ω_2 ont la même définition que dans le calcul précédent.

Les conditions aux limites consistent à annuler sur chacune des deux lames (en $z = 0$ et $z = D$) le déplacement des couches u et la vitesse transversale v_x, c'est-à-dire u et $\partial_z u$.

Elles s'écrivent :

- en z = 0 :

$$0 = u_1^+ + u_1^- + u_2^+ + u_2^- + \frac{jf}{\rho} \frac{q_x \partial_z E_x}{\omega_o^2 + \omega_1^2 \frac{K^2}{q_x^2} j\omega_2^2 \frac{K^4}{q_x^4}}$$

ou encore :

$$\begin{cases} 0 = u_1^+ + u_1^- + u_2^+ + u_2^- + a \\ 0 = q_1 (u_1^+ - u_1^-) + q_2 (u_2^+ - u_2^-) - K a \end{cases}$$

- *en $z = D$, nous pouvons négliger e^{-KD} ($\approx e^{-10\Pi}$) devant 1.*

$$\left| \begin{array}{l} 0 = u_1^+ e^{q_1 D} + u_1^- e^{-q_1 D} + u_2^+ e^{q_2 D} + u_2^- e^{-q_2 D} \\ 0 = q_1 u_1^+ e^{q_1 D} - q_1 u_1^- e^{-q_1 D} + q_2 u_2^+ e^{q_2 D} - q_2 u_2^- e^{-q_2 D} \end{array} \right.$$

La résolution de ce système de quatre équations à quatre inconnues est triviale mais fastidieuse. Elle conduit à l'expression suivante du discriminant :

$$\Delta = 4(1q_1^2 + q_2^2) \operatorname{sh} q_1 D \operatorname{sh} q_2 D - 4 q_1 q_2 \left| 2 \operatorname{ch} q_1 D \operatorname{ch} q_2 D - 2 \right|$$

et du déplacement u_1^+ :

$$u_1^+ = a \frac{2q_1 q_2 (1 - e^{-q_1 D} \operatorname{ch} q_2 D) - 2q_2^2 e^{-q_1 D} \operatorname{sh} q_2 D - K(2q_2 - 2q_2 e^{-q_1 D} \operatorname{ch} q_1 D - 2q_1 e^{-q_1 D} \operatorname{sh} q_2 D}{\Delta}$$

u_1^- s'obtient en permutant q_1 et $-q_1$ à partir de cette expression, u_2^+ en permutant q_1 et q_2, et u_2^- peut se déduire de u_2^+ en inversant q_2 et $-q_2$.

Arrivés à ce point dans la formulation du déplacement des couches, nous devons essayer de lui donner un sens un peu plus physique et pour cela comparer les différents termes.

Nous pouvons ainsi remarquer que $|q_2|$ sera toujours très supérieur à q_x. Pour une épaisseur de l'échantillon de 500 µm, $q_x D = 10\Pi$.

Par contre, nous n'avons étudié que les premières résonances du second son pour lesquelles $|q_1 D| \sim n\Pi$ (avec $n < 3$). Il est donc légitime de poser $|q_2| \gg |q_1|$.

Les expressions des différents coefficients se simplifient alors considérablement et nous obtenons au premier ordre en q_1/q_2 :

$$u_2^+ e^{q_2 D} \sim a \frac{q_1 (K - q_2)}{q_2^2 \operatorname{sh} q_1 D} \left(1 - \frac{2q_1}{q_2} \operatorname{cth} q_1 D \right)$$

$$u_2^- \sim - a \frac{1}{q_2^2 \operatorname{sh} q_1 D} \left(-q_1 q_2 \operatorname{ch} q_1 D - K q_1 \operatorname{ch} q_1 D + q_2 K \operatorname{sh} q_1 D \right) \left(1 - \frac{2q_1}{q_2} \operatorname{cth} q_1 D \right)$$

$$u_1^+ e^{q_1 D} \sim \frac{a}{\operatorname{sh} q_1 D} \left(- 1 - \frac{(q_1 - K)}{q_2} - \frac{2q_1}{q_2} \operatorname{cth} q_1 D \right)$$

$$u_1^- e^{-q_1 D} \sim -\frac{a}{\mathrm{sh}\, q_1 D}\left(-1 + \frac{(q_1+K)}{q_2} - \frac{2q_1}{q_2}\ \mathrm{cth}\ q_1 D\right)$$

L'analyse de ces résultats montre que $u_2^+ e^{q_2 z}$ et $u_2^- e^{-q_2 z}$ sont toujours d'un ordre de grandeur en q_1/q_2 plus petits que $u_1^+ e^{q_1 z}$ et $u_1^- e^{-q_1 z}$. Lorsque l'on prendra la transformée de Fourier de ces termes, la différence va encore s'aggrandir.

Nous pouvons donc négliger ces deux termes et écrire le déplacement des couches :

$$u(z) = -\frac{a}{\mathrm{sh} q_1 D} e^{q_1(z-D)} + \frac{a}{\mathrm{sh} q_1 D} e^{-q_1(z-D)} + a\, e^{-Kz}$$

On peut montrer que l'expression de sa transformée de Fourier :

$$u(q,-\omega) = \frac{a}{2\mathrm{sh} q_1 D} \frac{2q_1(\mathrm{ch} q_1 D - e^{-iq_z D}) - 2iq_z\, \mathrm{sh}\, q_1 D}{-(q_z^2 + q_1^2)} + \frac{a}{K + iq_z}$$

correspond exactement à la somme des termes 1 , 2 et 3 obtenus dans le cas d'un smectique compressible, dans lesquels, bien sûr, on aurait fait l'approximation $A \to \infty$.

Nous venons de montrer que l'on peut "oublier" une des conditions aux limites ou encore que la décomposition du déplacement en série de Fourier est valable -sauf tout près des lames, où il existe une couche limite à l'intérieur de laquelle v_x s'annule :

$u_2^- e^{-q_2 z}$ n'est plus négligeable pour $z < \frac{1}{\mathrm{Re}(q_2)}$.

Pour les fréquences auxquelles nous travaillons :

$$q_2^2 \sim \frac{q_x^4}{q_1^2} \qquad \left(q_2^2 \sim \frac{B}{j\omega\eta_u} q_x^2\right)$$

La réponse du smectique résonne lorsque $q_1^2 = -\frac{n^2\Pi^2}{D^2}$.

$$\mathrm{Re}(q_2) \sim \frac{1}{\sqrt{2}}\ 10\ q_x$$

L'épaisseur de la couche limite de viscosité est de l'ordre de 15 µm sur chacune des lames de verre.

- Problème de la perméation :

Le phénomène de perméation est le passage des molécules d'une couche smectique à une autre : il ne peut intervenir qu'à basse fréquence. Dans ces conditions, le champ électrique créé par les électrodes induit un déplacement des couches u, solution de l'équation différentielle suivante :

$$\left(j\omega q_x^2 \eta_u + B \frac{\partial^2}{\partial_z^2} + j \frac{\omega \eta_u}{q_x^2} \frac{\partial^4}{\partial_z^4} + \frac{\lambda_p B \eta_u}{q_x^2} \frac{\partial^6}{\partial_z^6} \right) u = j f q_x \partial_z E_x$$

où λ_p est la constante de perméation (d'ordre de grandeur 10^{-14} ucgs).

La résolution de cette équation est un problème un peu plus compliqué mais équivalent à celle que nous venons de faire pour la couche limite de viscosité. Elle fait intervenir six vecteurs d'ondes : $\pm q_1$, $\pm q_2$ et $\pm q_z$) dont l'ordre de grandeur des deux derniers nous donnera l'épaisseur de la couche de perméation. A bonne fréquence, le terme dominant de l'équation différentielle est $B\, \partial^2 u / \partial_z^2$. Une expression approchée de q_z^2 sera donc :

$$q_z^2 = \frac{q_x}{\sqrt{\lambda_p \eta_u}}$$

L'ordre de grandeur de λ_p ($\sim 10^{-14}$ ucgs) nous permet d'évaluer q_z :

$$q_z \sim 10^4 \text{cm}^{-1}$$

L'épaisseur de la couche limite de perméation est négligeable devant celle de l'échantillon. Il est donc raisonnable de négliger ce phénomène.

Annexe II

COMPARAISON DES DEUX CONSTANTES DE COMPRESSION DES COUCHES :

- *la composante adiabatique* B_S
- *la composante isotherme* B_T.

Nous avons vu dans la première partie de cet ouvrage, qu'en régime hydrodynamique, la contrainte d'élasticité ϕ_z est proportionnelle à la dérivée par rapport à z du déplacement u :

$$\phi_z = B \nabla_z u$$

On en déduit immédiatement le rapport des deux constantes adiabatiques et isothermes :

$$\frac{B_S}{B_T} = \frac{D(\phi_z,S)}{D(\nabla_z u,S)} \times \frac{D(\nabla_z u,T)}{D(\phi_z,T)}$$

$\left(\frac{D(x,y)}{D(z,t)}\right.$ est le jacobien défini par : $\left.\begin{vmatrix} \partial x/\partial z & \partial y/\partial z \\ \partial x/\partial t & \partial y/\partial t \end{vmatrix}\right)$

$$\frac{B_S}{B_T} = \frac{D(\phi_z,S)}{D(\phi_z,T)} \times \frac{D(\nabla_z u,T)}{D(\nabla_z u,S)} = \frac{C_{p,\phi_z}}{C_{p,\nabla_z u}}$$

C_{p,ϕ_z} est la chaleur spécifique du smectique à pression et contrainte constante.

$C_{p,\nabla_z u}$ est la chaleur spécifique du smectique à pression et $\nabla_z u$ constants.

Pour évaluer B_S/B_T, nous allons estimer la différence des deux chaleurs spécifiques. La démarche à suivre est bien connue : le calcul est le même que celui de $C_p - C_V$ (Physique statistique ; LANDAU et LIFCHITZ).

$$C_{p,\nabla_z u} = T \frac{D(S,p,\nabla_z u)}{D(T,p,\nabla_z u)} = T \frac{\dfrac{D(S,p,\nabla_z u)}{D(T,p,\phi_z)}}{\dfrac{D(T,p,\Delta_z u)}{D(T,p,\phi_z)}}$$

Si l'on explicite le jacobien du numérateur, on obtient immédiatement :

$$C_{p,\nabla_z u} - C_{p,\phi_z} = - T B_T \frac{D(S,T)}{D(\phi_z,T)} \times \frac{D(\nabla_z u,\phi_z)}{D(T,\phi_z)}$$

Il résulte directement de l'écriture de l'énergie du smectique A que :

$$\frac{D(S,T)}{D(\phi_z,T)} = - \frac{D(\nabla_z u,\phi_z)}{D(T,\phi_z)}$$

La différence entre les deux chaleurs spécifiques devient :

$$C_{p,\phi_z} - C_{p,\nabla_z u} = - T B_T \left| \frac{D(\nabla_z u,\phi_z)}{D(T,\phi_z)} \right|^2$$

Soient a l'épaisseur d'une couche et a_o sa valeur moyenne -

$$\nabla_z u \sim \frac{a - a_o}{a_o}$$

$$C_{p,\phi_z} - C_{p,\nabla_z u} = - T B_T \frac{1}{a_o^2} \left(\frac{\partial a}{\partial T} \right)^2_{\phi_z}$$

Un ordre de grandeur raisonnable de $10^{-3} {}^oK^{-1}$ pour $1/a(\partial a/\partial T)$ et de 10^8 ucgs pour B_T conduit à une différence des deux chaleurs spécifiques de l'ordre de 10^4 ucgs. Elle est très faible devant la valeur de C_p : $5\ 10^7$ erg $cm^{-3} {}^oK^{-1}$.

En conclusion, lorsque l'on néglige l'influence des défauts du smectique, les constantes de compression des couches isothermes et adiabatiques sont sensiblement les mêmes.

Vu et approuvé
Bordeaux le
Le Président de l'Université
de Bordeaux I

Centre de Recherche Paul PASCAL
Service Reprographique
Domaine Universitaire
33405 TALENCE